



PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

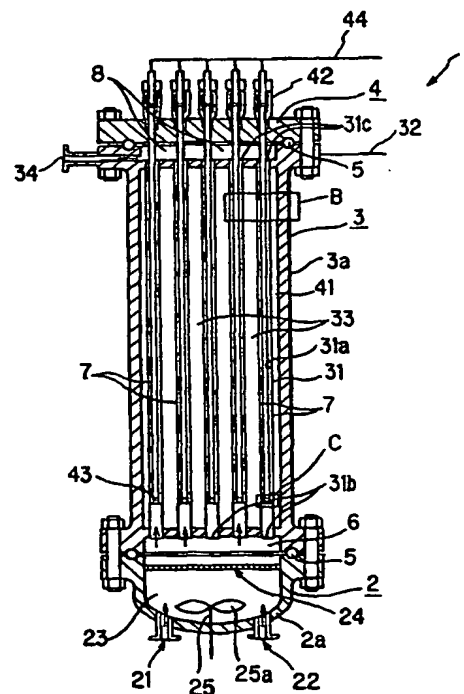
(51) 国際特許分類7 C02F 1/461, 1/74, 1/02, 1/44, C25B 3/02, 9/00, B01J 3/00, 3/02, A62D 3/00		A1	(11) 国際公開番号 WO00/47520
			(43) 国際公開日 2000年8月17日(17.08.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP00/00744		(74) 代理人 社本一夫, 外(SHAMOTO, Ichio et al.) 〒100-0004 東京都千代田区大手町二丁目2番1号 新大手町ビル206区 ユアサハラ法律特許事務所 Tokyo, (JP)	
(22) 国際出願日 2000年2月10日(10.02.00)			
(30) 優先権データ 特願平11/33455 1999年2月10日(10.02.99) JP 特願平11/33026 1999年2月10日(10.02.99) JP		(81) 指定国 CN, US, 欧州特許 (DE, FR, GB, IT)	
(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 株式会社 荏原製作所(EBARA CORPORATION)[JP/JP] 〒144-8510 東京都大田区羽田旭町11番1号 Tokyo, (JP)		添付公開書類 国際調査報告書	
(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 西村達也(NISHIMURA, Tatsuya)[JP/JP] 〒251-0032 神奈川県藤沢市片瀬360-10-B-110 Kanagawa, (JP) 芹川ロベルト正浩(SERIKAWA, Roberto Masahiro)[BR/JP] 〒242-0011 神奈川県大和市深見2259-A202 Kanagawa, (JP) 蘇 慶泉(SU, Qingquan)[CN/JP] 〒251-0861 神奈川県藤沢市大庭5449-9-C203 Kanagawa, (JP) 井坂正洋(ISAKA, Masahiro)[JP/JP] 〒251-0876 神奈川県藤沢市善行坂1-6-8-2-202 Kanagawa, (JP)			

(54)Title: APPARATUS AND METHOD FOR HYDROTHERMAL ELECTROLYSIS

(54)発明の名称 水熱電気分解装置及び方法

(57) Abstract

A hydrothermal electrolysis apparatus characterized in that it is equipped with a reaction chamber for electrolyzing a material to be treated under a high pressure at a high temperature and the total surface area of a pair of electrodes disposed in the reaction chamber (31) is 0.05 m² or more per m³ of the volume of the material to be treated; a hydrothermal electrolysis apparatus characterized in that it has two or more of cylindrical reaction chambers, each having an inner metal wall acting as a cathode, and anodes are disposed within the reaction chamber; and a hydrothermal electrolysis method characterized as comprising incorporating conducting particles into the material to be treated, to thereby substantially increase the surface area of electrodes in hydrothermal electrolysis are disclosed as some embodiments of the present invention. Such apparatuses and methods for hydrothermal electrolysis can be used for treating a large amount of liquid wastes with good efficiency.



(57)要約

本発明は、大量の廃液を効率よく処理できる水熱電気分解装置を提供することを目的とする。かかる課題を解決するために、本発明の一態様に係る水熱電気分解装置は、被処理物を高温高圧下で電気分解するための反応室を備え、反応室 3 1 に配置されている一対の電極の総表面積が被処理物の体積 1 m³ 当たり 0. 0 5 m² 以上であることを特徴とする。また、本発明の一実施形態に係る水熱電気分解装置は、2 以上の筒状の反応室を有し、前記反応室の各々が陰極として作用する金属製の内壁を有し、前記反応室の各々の内部に、陽極が配置されていることを特徴とする。更に、本発明の他の実施形態に係る水熱電気分解方法は、被処理物中に導電性粒子を含ませて、水熱電気分解における電極の表面積を実質的に増加させることを特徴とする。

PCTに基づいて公開される国際出願のパフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE アラブ首長国連邦	DM ドミニカ	KZ カザフスタン	RU ロシア
AG アンティグア・バーブーダ	DZ アルジェリア	LC セントルシア	SD スーダン
AL アルバニア	EE エストニア	LI リヒテンシュタイン	SE スウェーデン
AM アルメニア	ES スペイン	LK スリ・ランカ	SG シンガポール
AT オーストリア	FI フィンランド	LR リベリア	SI スロヴェニア
AU オーストラリア	FR フランス	LS レソト	SK スロヴァキア
AZ アゼルバイジャン	GA ガボン	LT リトアニア	SL シエラ・レオネ
BA ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB 英国	LU ルクセンブルグ	SN セネガル
BB バルバドス	GD グレナダ	LV ラトヴィア	SZ スワジランド
BE ベルギー	GE グルジア	MA モロッコ	TD チャード
BF ブルキナ・ファソ	GH ガーナ	MC モナコ	TG トーゴ
BG ブルガリア	GM ガンビア	MD モルドヴァ	TJ タジキスタン
BJ ベナン	GN ギニア	MG マダガスカル	TM トルクメニスタン
BR ブラジル	GR ギリシャ	MK マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR トルコ
BY ベラルーシ	GW ギニア・ビサオ	共和国	TT トリニダード・トバゴ
CA カナダ	HR クロアチア	ML マリ	TZ タンザニア
CF 中央アフリカ	HU ハンガリー	MN モンゴル	UA ウクライナ
CG コンゴ	ID インドネシア	MR モリタニア	UG ウガンダ
CH スイス	IE アイルランド	MW マラウイ	US 米国
CI コートジボアール	IL イスラエル	MX メキシコ	UZ ウズベキスタン
CM カメルーン	IN インド	MZ モザンビーク	VN ヴェトナム
CN 中国	IS アイスランド	NE ニジェール	YU ユーゴスラヴィア
CU コスタ・リカ	IT イタリア	NL オランダ	ZA 南アフリカ共和国
CY キューバ	JP 日本	NO ノルウェー	ZW ジンバブエ
CZ チェコ	KE ケニア	NZ ニュージーランド	
DE ドイツ	KG キルギスタン	PL ポーランド	
DK デンマーク	KP 北朝鮮	PT ポルトガル	
	KR 韓国	RO ルーマニア	

明 細 書

水熱電気分解装置及び方法

5

技術分野

本発明は、水熱反応と電気分解とを同時に行う装置及び方法に関する。本明細書において、水熱反応と電気分解とを同時に行うことを水熱電気分解という。本発明では、有機物（合成高分子を含む）、アンモニア等の還元性物質を含有する被処理物、例えば、有機性排液、ハロゲン化物イオンを含む各種産業廃液等を大量、且つ連続的に処理することができる。

10

背景技術

1998年8月10日に出願された国際出願PCT/J P 98/03544号（国際公開WO99/07641号）には、本発明者らが先に開発した水熱電気分解方法及び装置が記載されている。この方法及び装置によれば、水熱反応と電気分解とを同時に行うことにより、有機物（合成高分子を含む）、アンモニア等の還元性物質を効果的に酸化分解することができる。また、被処理物中に酸化剤が含まれる場合、ハロゲン化物イオン等の強酸イオンが含まれる場合などには、水熱電気分解において、水素の発生を抑制することができる。国際出願PCT/J P 98/03544号の全ての開示は、本明細書に援用される。

20

水熱電気分解では、高圧が求められるため、反応容器は典型的には密閉された耐圧容器が用いられる。そこで、水熱電気分解により廃液を浄化する場合には、バッチ処理又はバッチ処理を繰り返す準連続処理、又は連続処理が行われる。

しかし、バッチ処理や準連続処理では、一回に少量の廃液しか処理できず、大量の廃液を処理することが困難であった。例えば、バッチ処理の場合には廃液の供給と処理液の交換をその都度おこなう必要がある。しかし、高温高圧で反応を行うためには、フランジ等のボルト締め作業も労力と注意を必要とする。また、運転時間やランニングコストの面で効率的でない。

25

一方、連続的に廃液を処理する場合には、廃液の量に対応して大量の電力を供給することが求められる。特に、大量且つ高負荷の被処理物を連続的に処理する場合には、特に大量の電力の供給が求められ、数千～数万アンペアの直流電流が必要となることもあり得る。しかしながら、電極の材質に依存して許容電流密度には限界があることを考慮すると、数百～千アンペアの直流電流を通電することが困難となる場合がある。また反応容器が大きくなるにつれて、電極の表面で均一に電力を供給し、反応を均一に進行することも困難になる。

したがって、本発明の目的は、大量の廃液を効率良く連続処理することも可能な水熱電気分解装置を提供することにある。

10 本発明者らは、上述の課題を解決すべく検討した結果、高圧容器内で電極の表面積を増大させることにより、大量の廃液を効率良く処理できることを見出した。

発明の開示

本発明の一態様によれば、水及び還元性物質を含有する被処理物を高温高圧下
15 で電気分解するための反応室を備えた水熱電気分解装置であって、上記反応室は、チャンバーを画定し、かつ、一対の電極を有し、上記反応室中のチャンバーの体積 1 m^3 あたりの上記チャンバーに曝される一対の上記電極の総表面積は、 0.05 m^2 以上であることを特徴とする水熱電気分解装置が提供される。

本発明に係る水熱電気分解装置は、反応室の下方に被処理物を導入する導入口
20 と、上方に処理物を排出する排出口とを有することが好ましい。これにより、被処理物の連続処理が容易になる。

また、上記反応室は、2以上の筒形状の反応室を有し、前記反応室の各々は陰極として作用する金属製の内壁を有し、前記反応室の各々の内部に、陽極が配置されていることが好ましい。陽極及び陰極が前記の一対の電極を構成することが
25 できる。

あるいは、前記一対の電極が、同心円筒形状を有する2以上の第1側壁と、前記第1側壁を互いに連結する第1連結部材とを有する第1電極と、同心円筒形状を有する2以上の第2側壁と、前記第2側壁を互いに連結する第2連結部材とを有する第2電極と、を有していて、前記第1側壁と前記第2側壁との間に被処理

物の流路を形成するように、前記第 1 電極の前記第 1 側壁と前記第 2 電極の前記第 2 側壁とが交互に配置されていることが好ましい。

- 更に、本発明の水熱電気分解装置は、高圧ポンプを有し、前記反応室に被処理物を供給する被処理物ラインと、前記反応室に酸化剤を供給する酸化剤ラインと、
- 5 前記反応室から処理物を排出する排出ラインと、を更に有することが好ましい。

- 本発明の他の態様によれば、水と還元性物質とを有する被処理物を上記水熱電気分解装置の反応室に導入する工程と、前記反応室中、100℃以上前記被処理物の臨界温度以下の温度にて、前記被処理物中の水が液相を維持する圧力の下、直流電流を供給する工程と、前記反応室から処理物を排出する工程と、を有する
- 10 ことを特徴とする、浄化した水の製造方法が提供される。この浄化した水は、他のプロセスに再利用してもよいし、放流してもよい。

以下、本発明の好ましい実施形態について、図面を参照しつつ詳細に説明する。

図面の簡単な説明

- 15 図 1 は、本発明の第 1 の実施形態の水熱電気分解装置の要部である反応容器の内部構造を示す長手方向断面図である。

図 2 は、反応容器の内部構造を示す横断面図である。

図 3 は、図 1 の B の拡大断面図である。

図 4 は、図 1 の反応容器の C の部分内部構造を示す横拡大断面図である。

- 20 図 5 は、第 2 の実施形態の水熱電気分解装置の要部である反応容器の内部構造を示す長手方向断面図である。

図 6 は、反応容器の内部構造を示す横断面図である。

図 7 は、図 5 の E の拡大断面図である。

図 8 は、図 6 の F の拡大断面図である。

- 25 図 9 は、図 5 の G の拡大断面図である。

図 10 は、本発明の第 1 の実施態様の変形例である。

図 11 は、図 10 に示される本発明の第 1 の実施態様の変形例における反応容器の内部構造を示す横断面図である。

図 12 は、本発明の第 1 の実施態様の他の変形例である。

図 1 3 は、本発明の水熱電気分解装置の説明図である。

図 1 4 は、本発明の第 3 の実施形態の水熱電気分解装置の説明図である。

図 1 5 は、実施例 1 において用いた本発明の水熱電気分解方法に関する実験装置の概念図である。

5

発明を実施するための最良の形態

図 1 は、第 1 の実施形態の水熱電気分解装置の要部である反応容器 1 の内部構造を示す長手方向断面図であり、図 2 は、反応容器の内部構造を示す幅方向断面図である。図 3 は、図 1 の B の拡大断面図である。図 4 は、図 2 の C の拡大断面図である。なお、図 4 は、スパーサ 4 3 が配置されている部分の断面を示す。

本実施形態の水熱電気分解装置は、図 1 ～ 4 に示すように、水を含む被処理物を高温高圧下で電気分解するための反応室 3 1 を備えている。反応室 3 1 は、チャンバー 7 を画定し、かつ、一対の電極 3 1 a、4 1 を有する。即ち、反応室 3 1 の内面を電極 3 1 a として作用させることができる。反応室 3 1 中のチャン
15 バー 7 の体積 1 m^3 あたりのチャンバーに曝される一対の電極 3 1 a、4 1 の総表面積は、 0.05 m^2 以上であり、好ましくは 0.1 m^2 以上であり、更に好ましくは、 0.2 m^2 以上である。なお、ここで「電極の総表面積」とは、電気分解反応に実質的に関与する電極の有効表面積を意味する。

一対の電極 3 1 a、4 1 の総表面積が 0.05 m^2 未満であると、十分な電力
20 を被処理物に供給することができず、迅速に水熱電気分解を行うことができない。

図 1 に示される本発明の第 1 の実施形態では、反応室は、2 以上の筒形状の反応室 3 1 から構成される。反応室 3 1 の各々は陰極として作用する金属製の内壁 3 1 a を有し、前記反応室 3 1 の各々の内部に、陽極として作用する放電電極 4 1 が配置されている。

25 本発明の第 1 の実施形態は反応容器 1 を有する。そして、反応容器 1 は、容器下方部 2 と容器中間部 3 と容器上方部 4 とからなる。容器下方部 2 には、被処理物を導入する導入口 2 1、酸化剤を導入する酸化剤導入口 2 2、及び導入口 2 1 から導入された被処理物と酸化剤導入口 2 2 から導入された酸化剤とを混合する

混合室 2 3 が設けられている。容器中間部 3 には、酸化剤と混合された被処理物を加圧・加熱状態で電気分解する反応室 3 1 が設けられている。

容器上方部 4 には、各々の反応室 3 1 に対応した電流導入端子 4 2 が設けられている。電流導入端子 4 2 は、反応容器 1 と絶縁するための絶縁部材を有することが好ましい。各々の電流導入端子 4 2 には、放電電極 4 1 が設けられており、放電電極 4 1 は更に反応室 3 1 の内部にまで伸びている。

容器下方部 2、容器中間部 3 及び容器上方部 4 は、それぞれ、ガスケット 5 を介して内部を密封して、連結されている。これにより、反応容器 1 全体が耐圧容器となされている。

10 導入口 2 1 及び酸化剤導入口 2 2 は、それぞれ、容器下方部 2 の下面側の壁部 2 a に一つ設けられている。導入口 2 1 は、供給物ラインに連結されていて、酸化剤導入口 2 2 は酸化剤ラインに連結されている。

混合室 2 3 は、抵抗板 2 4 で仕切られており、内部に攪拌機 2 5 が設置されている。抵抗板 2 4 は、被処理物の流れを乱すことにより混合するものであり、公知のものを特に制限なく用いることができる。また、攪拌機 2 5 は、混合を促進するために用いられるものであり、攪拌羽 2 5 a を有する通常のもので、モーター（図示せず）に連結されている。

容器下方部 2 と容器中間部 3 との連結部分には、混合室 2 3 で酸化剤と混合された被処理物を反応室 3 1 にスムーズに導入するための導入室 6 が設けられている。容器中間部 3 の壁部 3 a は、マイナスライン 3 2 に接続されており、マイナスライン 3 2 は、直流定電流電圧電源のマイナス端子（図示せず）に接続されている。

また、反応室 3 1 を形成する筒状体は、容器中間部 3 の壁部 3 a と導通している。例えば、ステンレス鋼製の容器中間部 3 にステンレス鋼製の筒状体が溶接されていてもよい。これにより、反応室 3 1 の内面 3 1 a 全面が陰極となされている。尚、反応室 3 1 は、容器中間部 3 と一体成形しても良いし、また、別体として成形し嵌め込むなどして一体化しても良い。このように、反応室 3 1 の内面 3 1 a がマイナス電極として作用するため、電気分解による腐食が防止される。

放電電極 4 1 は、反応室 3 1 の内径よりも径の細い棒状体であり、各反応室 3 1 に一つずつ挿入されるように所定位置に配置されている。もっとも、放電電極は、メッシュ又は網を円筒形状に形成したものでもよいし、軸方向に中空部が形成されている円筒形状であってもよい。

- 5 本発明では、陽極と陰極との距離が均等であることが好ましい。この距離にばらつきがある場合には、距離が短い部分に局部的に過大な電流が流れ、その部分の陽極の劣化が促進されるからである。本実施態様では、反応室 3 1 の内壁 3 1 a が、円筒形状を有することが好ましい。また、放電電極 4 1 の外周面も円筒形状を有し、放電電極 4 1 の中心軸が反応室 3 1 の内壁 3 1 a の中心軸と実質的に
10 一致することが好ましい。

- また、放電電極 4 1 の先端には、反応室 3 1 の内面と接触しないように絶縁スペーサ 4 3 が設置されている。絶縁スペーサ 4 3 は、放電電極 4 1 の外表面の形状と反応室 3 1 の内面の形状に合致するように形成されていることが好ましい。また、絶縁スペーサ 4 3 には、被処理物が通過するように、貫通孔が形成されて
15 いることが好ましい。

電流導入端子 4 2 は、プラスライン 4 4 に接続されており、プラスライン 4 4 は別途設置の直流定電流電源のプラス端子（図示せず）に接続されている。すなわち放電電極 4 1 は陽極となる。

- そして、反応室 3 1 の内面と放電電極 4 1 との間にチャンバー 7 が形成されており、チャンバー 7 は、容器中間部 3 と容器上方部 4 との連結部分に形成された
20 排出流路 8 に連通されている。排出流路 8 は、容器中間部 4 の上端側に設けられた、処理終了後の被処理物を反応容器 1 から排出する排出口 3 4 に連通されている。

- すなわち、本実施形態の水熱電気分解装置において、反応容器は、その下方に被処理物を導入する導入口を有し、且つその上方に処理物を排出する排出口を有する。これにより、処理物を連続的に水熱電気分解することが容易になる。また、
25 反応容器は、複数の棒状の放電電極を備えており、また、これと同数の反応室を有する。

本明細書において、「反応室中のチャンバーの体積」には、反応室 3 1 中の放電電極 4 1 の体積は含まれず、被処理物が、高温、高圧で電気分解される部分の体積を意味する。具体的には、本実施形態においては、反応室 3 1 内において、電極 3 1 a、4 1 間に位置するチャンバー 7 の体積を意味する。

- 5 本実施形態において、「チャンバーに曝される一対の電極の総表面積」とは、チャンバー 7 に曝される電極 3 1 a の表面積と、放電電極 4 1 の表面積との合計になる。放電電極 4 1 の面積であっても、チャンバー 7 に曝されていない部分、例えば、容器上方部 4 の内部に位置する放電電極の部分の表面積、排出流路 8 に曝されている放電電極の部分の表面積は含まれない。これらの部分は、被処理物
10 の電気分解に関与していないからである。

- また、各部材の形成材料は、容器中間部 3 及び反応室 3 1 の形成材料として導電性の素材を用いること、及び反応容器全体が耐熱・耐圧性の材料からなる必要がある点を除いて任意である。容器中間部 3 及び反応室 3 1 の形成材料としては、例えば、ステンレス鋼が用いられる。また、反応室 3 1 が多層構造を有していて、
15 最も内側の層がステンレス鋼等の導電性材料であり、その他の層がセラミックスであってもよい。

本実施形態の水熱電気分解装置は、次のように使用することができる。

- 被処理物を、その臨界温度以下の温度まで昇温した後、導入口 2 1 から導入する。これと同時に、酸化剤導入口 2 2 から、酸素溶存水のような酸化剤を導入し、
20 混合室 2 3 内で混合させる。酸化剤と混合された被処理物は、順次導入される被処理物及び酸化剤の圧力により上方に押し出され、反応室 3 1 の下方開口 3 1 b から反応室 3 1 内に導入される。反応室 3 1 内に導入された被処理物には、チャンバー 7 を移動する間に水熱反応及び電気分解による酸化反応とが生じ、被処理物中の還元性物質が分解する。処理された被処理物は、反応室 3 1 の上方開口 3
25 1 c から排出流路 8 に導入され、排出口 3 4 より排出される。排出された処理後の被処理物は、公知の処理方法と同様に、各種タンクなどに導入される。本実施形態の装置では、これらの一連の反応処理は連続して行うことができる。

本実施形態の水熱電気分解装置によれば、上述の如く、反応容器が特定の面積の電極を有するので、処理能力が増加されると共に均一反応を促進させることが

できるので、被処理物の大量処理が可能である。また、本実施形態のように、反応容器を下方に導入口を有し且つ上方に排出口を有するものを用いて連続処理を行っても、上記電極が上述の特定の面積を有することから、大量の被処理物を連続的に処理することが可能である。また、電流導入端子の取り付けが容易で、作業性が良いという利点も奏する。

したがって、本発明の装置は、チャンバー体積あたりの電極の表面積を増大させることによって、水熱電気分解反応の効率を高め、投入エネルギーを有効に利用し、さらに装置の小型化をも図ることができるものである。

次に、本発明の第2の実施形態について図5～8を参照しつつ説明する。ここで、図5は、第2の実施形態の水熱電気分解装置の要部である反応容器の内部構造を示す長手方向断面図であり、図6は、反応容器の内部構造を示す幅方向断面図である。図7は、図5のEの拡大断面図である。図8は、図6のFの拡大断面図である。図9は、図5のGの拡大断面図である。尚、以下の説明においては、上述の第1の実施形態と異なる点を特に詳述する。特に説明しない点については上述の第1の実施形態における説明が適宜適用される。

図5～図8に示す第2の実施形態では、容器下方部2は、被処理物を供給する導入口21がその下面中央に設けられており、導入口21には容器下方部2から容器中間部3の上方に伸びるパイプ26が連結されている。被処理物は、所望により、酸化剤とあらかじめ混合機（図示せず）で混合されている。また、被処理物は、100℃以上、臨界温度以下の温度まで予め昇温されていることが好ましい。

容器中間部3には、陽極35aと、陰極35bとが配置されている。陽極35a（第1電極）は、同心円筒形状を有する2以上の側壁37a（第1側壁）と、側壁37aを互いに連結する連結部材36a（第1連結部材）とを有する。同様に、陰極35b（第2電極）は、同心円筒形状を有する2以上の側壁37b（第2側壁）と、側壁37bを互いに連結する連結部材36b（第2連結部材）とを有する。そして、側壁37aと側壁37bとの間に被処理物の流路を形成するように、陽極35aの側壁37aと陰極35bの側壁37bとが交互に配置されている。

パイプ 2 6 が連結部材 3 6 b と電氣的に接続し、陰極 3 5 b として作用することが好ましい。パイプ 2 6 及び反応容器本体のカソード防食ができるからである。

連結部材 3 6 a、3 6 b は、何れも円盤状で導電性である。連結部材 3 6 a は、陽極 3 5 a を電流導入端子 4 2 に固定する。一方、連結部材 3 6 b は、陰極 3 5 b を容器下方部 2 に固定する。

すなわち、本実施形態の水熱電気分解装置においては、同心円筒状に連続した反応流路を有している。さらに、反応流路は、反応容器の中心から外周に向けて連続して配置されており、被処理物が、反応容器の中心から外周に向けて流れるようになされている。容器上方部 4 では、複数の電流導入端子 4 2 が設置されている。尚、図 9 に示すように、容器上方部 4 と電流導入端子 4 2 は絶縁体 4 2 a により電氣的に絶縁されている。

本実施形態では、「反応室中のチャンバーの体積」は、容器中間部 3 中にて、被処理物が、水熱電気分解される部分の体積を意味する。「反応室中のチャンバーの体積」には、陽極 3 5 a の体積、陰極 3 5 b の体積、パイプ 2 6 が画定する体積は含まれない。

パイプ 2 6 が陰極として作用する場合には、パイプ 2 6 の径方向に外側の流路はチャンバーに含まれる。これに対して、パイプ 2 6 が導電性ではなく電極として作用しない場合には、パイプ 2 6 の径方向に外側の流路はチャンバーに含まれない。

本実施形態の装置では、被処理物は、導入口 2 1 から導入され、パイプ 2 6 を介して反応容器の上部に移送され、次いで、その外側において、反応容器の上部から下部に移送され、次いで、その更に外側で下部から上部に移送される。このようにして、被処理物は、反応容器の中心から外側へと順次移送されていく。この過程において、被処理物中の還元性物質が水熱電気分解により酸化分解される。処理された被処理物は、排出口 3 4 から反応容器 1 の外部に排出される。

本実施形態の装置においては、第 1 の実施形態と同じ効果が奏される他、反応流路を長くとることができ、電気分解の効率を向上させることができる。このため、濃度の低い被処理物の処理も効果的に行うことができる、という利点を奏するものである。

なお、本発明の第 1 及び第 2 の実施形態に係る水熱電気分解装置は、上述の形態に制限されず本発明の趣旨を逸脱しない範囲で種々変更が可能である。

例えば、第 1 の実施形態においては、混合室に攪拌機を設けたものを例示して説明したが、第 2 の実施形態に示すように、そもそも混合室を設けることは必ずしも必要でない。また、混合室では、被処理物と酸化剤等とが混合すればよく、攪拌機を設けることは必ずしも必要ではないし、同様に、抵抗板を設けることも必ずしも必要ではない。

図 2 及び図 3 の代わりに、図 10 及び図 11 に示す実施態様であってもよい。即ち、容器中間部 3 の内部であって、反応室 31 の外側に断熱材 39 を充填してもよい。

あるいは、断熱材を設ける代わりに、容器中間部 3 にポートを設け、真空ポンプにて内部を減圧し真空断熱できるようにして、保温してもよい。

あるいは、図 12 に示すように、容器中間部 3 の外周面に加熱ヒータ 45 を設置して温度を保つようにしてもよい。更に、図 12 に示すように、容器中間部 3 にポート 46 及びポート 47 を設けてもよい。これにより、ポート 46 から容器中間部 3 の内部に熱媒体を流し、容器中間部 3 の内部を直接、熱媒体で加熱することにより温度を一定に保つことができる。熱媒体はポート 47 から排出される。なお、熱媒体は加熱のみではなく、冷却のために用いても良い。

特に、第 2 の実施形態においては、容器の周面に近づくにつれて被処理物の温度が低下することも考えられるが、このような場合に、図 12 と同様に、容器中間部 3 の外周面に加熱ヒーターを設置することが有用である。

次に、本発明において用いることのできる部材の材料、反応条件等について述べる。本発明に係る水熱電気分解装置においては、放電電極又は陽極の表面が、ルテニウム、イリジウム、白金、パラジウム、ロジウム、錫若しくはこれらの酸化物又はフェライトを有することが好ましい。例えば、放電電極そのものがこれらの物質で構成されていてもよい。あるいは、放電電極の基材の表面がこれらの物質で被覆されていてもよい。

ルテニウム、イリジウム、白金、パラジウム、ロジウム、錫は、金属元素そのものであってもよいし、酸化物であってもよい。また、これらの金属の合金も好

適に用いられる。合金としては、例えば、白金－イリジウム、ルテニウム－錫、ルテニウム－チタンなどが挙げられる。上記した金属等は、耐食性に優れており、陽極として用いる場合に優れた不溶性を示す。実施態様によっては、特に、パラジウム、ルテニウム、白金とイリジウムとの合金を主成分とするものが好ましい。

- 5 本発明に係る水熱電気分解反応の際には、陽極の表面の電流密度は、 $0.1 \text{ mA/dm}^2 \sim 500 \text{ A/dm}^2$ であることが好ましい。電流密度が 500 A/dm^2 より高い場合には、陽極の表面が剥離したり、溶出し易くなる。一方、電流密度が 0.1 mA/dm^2 より低い場合には、陽極の面積を大きくする必要があり、装置が大型化する。電流密度は、 $10 \text{ mA/dm}^2 \sim 100 \text{ A/dm}^2$ であることが更に好ましく、 $100 \text{ mA/dm}^2 \sim 50 \text{ A/dm}^2$ であることが更になお好ましい。なお、陽極の新材料が開発された場合などには、陽極の電流密度を更に高くすることもできる。

- 本発明に係る水熱電気分解装置及び方法においては、水及び還元性物質を含有する被処理物を処理して、還元性物質を酸化分解することができる。本発明によ
- 15 って処理することのできる被処理物として、各種の廃液を処理することができる。本発明で分解できる還元性物質としては有機物及びアンモニアが挙げられ、有機物としては、アルカン、アルケン、アルキン等の脂肪族炭化水素及び芳香族炭化水素；アルコール；アルデヒド；ケトン；アミン；酢酸等のカルボン酸；エステル、アミド、酸無水物等のカルボン酸誘導体；ハロゲン化炭化水素；フェノール
- 20 類；スルホキサイド、メルカプトン、チオール、ポリスルホン等の含硫黄有機化合物；等が挙げられる。また、有機物には、ポリオレフィン、ポリエステル、各種エンジニアリングプラスチック等の合成高分子も包含される。

- 被処理物は、流動性があることが好ましく、懸濁液、乳化液、水溶液、スラリーの何れでもよく、懸濁液又はスラリーであることが好ましい。被処理物には、
- 25 液体又は固体の還元性物質が混合していてもよい。被処理物には、非沈降性の固体粒子が水に分散している懸濁液、液体粒子が水に分散している乳化液、液体の有機物又は無機物が溶存している水溶液、又は、これらの混合物が含まれる。例えば、被処理物は、水、液体有機物、溶解塩類を含有する連続相と、粒子等の固

体有機物を含有する分散相とを含有し、更に、灰など不燃性固体を含有してもよい。

被処理物には、強酸イオンが含有していることが好ましい。これは、強酸イオンが電気化学的触媒作用を示し、水熱電気分解反応をより効率よく進行させるからである。強酸イオンは、無機酸イオンであってもよいし、有機酸イオンであってもよいが、無機酸イオンであることが好ましい。有機酸イオンは、水熱電気分解が進行するにつれて、分解する場合があるからである。

無機強酸イオンとしては、例えば、ハロゲン化物イオン、硫酸イオン (SO_4^{2-})、硝酸イオン (NO_3^-)、リン酸イオン (PO_4^{3-}) が挙げられ、ハロゲン化物イオンが特に好ましい。有機強酸イオンとしては、例えば、トリフルオロ酢酸イオン (CF_3COO^-) 等が挙げられる。

ハロゲン化物イオンとしては、塩化物イオン (Cl^-)、臭化物イオン (Br^-)、ヨウ化物イオン (I^-)、又は、これらの任意の組み合わせが挙げられ、塩化物イオン又は臭化物イオンが特に好ましい。ハロゲン化物イオンを生成する塩が被処理物中に溶解されていてもよい。また、塩化水素 (HCl)、臭化水素 (HBr)、ヨウ化水素 (HI) 等のハロゲン酸が被処理物に含まれていてもよい。被処理物にポリ塩化ビニルが含まれているときには、水熱反応が進行するにつれて、塩化物イオンが水相に移動し、塩化物イオンが含まれるようになる。

本発明に係る水熱電気分解においては、被処理物に酸化剤を添加して、水熱電気分解酸化をより効率よく進行させることが好ましい。本発明において用いることのできる酸化剤としては、酸素ガス、オゾンガス、過酸化水素、次亜ハロゲン酸が好ましく、酸素ガスが更に好ましい。酸素ガスとしては、酸素ガスを含有する気体を用いてもよく、例えば、空気が好適に用いられる。即ち、空気を水等に吹き込んで酸素を溶存させ、この酸素溶存水を酸化剤として、酸化剤導入孔 22 から導入することができる。或いは、圧縮空気を反応室 23 に導入して酸化剤として作用させることもできる。

本発明に係る水熱電気分解においては、 100°C 以上であって水媒体の臨界温度以下の温度において、被処理物が液相を維持する圧力の下、水熱反応が行われる。 100°C より低い温度では、水熱反応の速度が低下し、反応時間が長くなる

ので好ましくない。一方、臨界温度より高い温度では、水媒体の物性が顕著に変化するのので、本発明の知見が当然に適用できない。超臨界では、電解質の溶解度は著しく減少し、電気伝導度が低下する。

次に、本発明に係る水熱電気分解反応装置を用いた被処理物の処理システムの
5 具体的構成例について、図 13 を参照しながら説明する。図 13 は、かかる被処理物の処理システムを図示する。図 13 に示す処理システムにおいては、本発明に係る水熱電気分解反応容器 1 に、被処理物を供給するための被処理物ライン 60 が接続する。被処理物ライン 60 は、供給タンク 61、高圧ポンプ 66、熱交換器 70、及び、加熱装置 74 を有することが好ましく、被処理物はこの順序に
10 移動することができる。水熱電気分解反応容器 1 としては、第 1 の実施態様の水熱電気分解反応容器、第 2 の実施態様の水熱電気分解反応容器等を用いることができる。

供給タンク 61 は被処理物を保持することができる。供給タンク 61 には、供給タンク 61 に排水を導入する排水ライン 62 及び供給タンク 61 に塩化物イオン (C1-) 等のハロゲン化物イオン源を供給するハロゲン化物ライン 63 が接
15 続している。このハロゲン化物イオン源としては海水を用いてもよい。ハロゲン化物ライン 63 は、塩化物イオン等のハロゲン化物イオンを供給タンク 61 に供給して、供給タンク 61 に保持されている被処理物のハロゲン化物イオン濃度を調整することができる。

20 供給タンク 61 は、ライン 64 を介して、高圧ポンプ 66 に接続し、被処理物を移送させることができる。ライン 64 には水道水を供給するための水道水ライン 68 が接続していることが好ましい。図 13 の水熱電気分解装置を始動させる場合又は停止させる場合には、還元性物質が実質的に含まれていない水道水を一時的に流すことができるからである。

25 高圧ポンプ 66 は、被処理物を水熱反応で求められる圧力にまで加圧し、この圧力により被処理物を熱交換器 70、加熱装置 74 を介して、反応容器 1 に送り込む。

被処理物ライン 60 は、熱交換器 70 を有することが好ましい。熱交換器 70 は被処理物ライン 60 及び排出ライン 100 に接続し、熱交換器 70 は、被処理

- 物ライン60を流れる被処理物と排出ライン100を流れる処理液との間の熱交換を行う。高圧ポンプ66で加圧された被処理物は、室温であることが多い。一方、反応容器1から排出される処理液は水熱反応を経て、高温に保たれている。そこで、熱交換器70により、被処理物ライン60を流れる被処理物を加熱する
- 5 一方、排出ライン100を流れる処理液を冷却する。なお、熱交換器が設けられていない場合であっても、熱効率が低下するのに留まる。

被処理物ライン60は、熱交換器70で加温された被処理物を更に加熱するための加熱装置74を有することが好ましい。反応容器1の外側から反応容器1の内部の被処理物52を加熱することは、特に反応容器1の直径が大きい場合には

10 効率が悪いので、このように加熱装置74を被処理物ライン中に配置させることが好ましい。加熱装置74は、例えば、水熱反応で求められる温度にまで被処理物を加熱する。なお、被処理物の加熱は、反応容器1においての還元性物質の酸化反応による発熱及び電気分解による発熱することも考慮して温度を設定する。また、反応容器1の外側を加熱するための加熱装置を更に設けてもよい。

- 15 被処理物ライン60と別個に、酸化剤ライン80を設けることが好ましい。酸化剤としては、酸素ガスを含有する気体、例えば、空気を用いることができる。空気は、流路81よりコンプレッサ82に導入され、例えば、1MPaから25MPaにまで加圧されることが好ましい。この圧縮空気はライン83を介してアキュムレーター84に導入される。これにより、コンプレッサーに起因する圧縮
- 20 空気の脈動を防止することができる。

アキュムレーター84の下流には、圧縮空気の量、即ち、酸化剤の量を調整するために弁85が設けられている。そして、圧縮空気は、熱交換器87で予熱され、ライン188を介して反応容器150に導入される。熱交換器187は圧縮空気を加熱する一方、処理液を冷却する。

- 25 あるいは、酸素ガスが溶解した水等の液体を反応容器1に導入してもよい。酸素ガス（空気として添加する場合を含む。）のようなガス形態の酸化剤は、温度が低いほど、又は、圧力が高いほど、水への溶解度が高い。従って、高圧下において、温度が低い又は室温の水にガス形態の酸化剤を溶解させ、次いで、この冷水を反応容器に供給してもよい。あるいは、過酸化水素水、次亜塩素酸又は固体

の酸化剤を水に溶解させ、高圧ポンプ等により反応容器に供給しても良い。なお、水分を多く含む酸化剤を入れる場合には、高圧ポンプ 86 と反応容器 1 の間に別の加熱器を設けてもよい。

酸化剤ライン 80 は、反応容器 1 に直接、接続するのが好ましい。酸化剤ライン 80 が被処理物ライン 60 に接続された場合には、加熱装置 74 と反応容器 50 との間のライン 76 が腐食され易くなるからである。一方、酸化剤が反応容器 1 に直接導入される場合は、反応容器 1 の内壁が電気分解の陰極として作用するので反応容器 1 の内壁の腐食を防止することができる。

反応容器 1 としては、上記した第 1 の実施形態又は第 2 の実施形態の反応容器を用いることができる。反応容器 1 は、軸方向に長い筒形状を有することが好ましく、円筒形状を有することが好ましい。直流電源 94 の正極端子 96 及び負極端子 97 は、それぞれ、ライン 98、99 を介して、水熱電気分解装置 1 の陽極及び陰極に接続される。

図 13 に示される態様においては、反応容器 1 に、水熱電気分解された被処理物を排出するための排出ライン 100 が接続されている。排出ライン 100 は、熱交換器 70 / 87 と、気液分離器 102 と、処理水タンク 110 とを有することが好ましく、反応容器 1 で水熱分解処理された処理水が、この順序で移送され得る。熱交換器 70 / 87 については既に説明してある。

排出ライン 100 には、気液分離器 102 が接続していることが好ましい。気液分離器 102 は、処理水中の気体と液体とを分離する。気液分離器 102 の内部では、一定のレベル 104 にまで処理水が保持されている。このレベル 104 の上部の空間と、このレベル 104 の下部の処理水との間で導圧管を設け、この導圧管に、気液界面又はスラリーレベルを定めるためのレベル検出器を設けてもよい。レベル検出機構 106 は、気体と液体との差圧でレベル 104 を測定し、処理水の排出量は、このレベル 104 が一定ないし一定の範囲になるように行ってもよい。なお、気液分離器 102 において、レベル 104 の上部と下部との各々に、圧力を電気信号に変換する圧電素子を設け、この電気信号がレベル検出器に入力されることにより、差圧を検出してもよい。

気液分離器 102 は、気液分離器 102 の内部の被処理物のレベルを一定の範囲に定めるレベル調節機構 106 を有することが好ましい。かかるレベル調節機構は、ガスと被処理物の圧力の差を検出するためのレベル検出器、被処理物を排出するための弁、レベル検出器からの信号で弁を制御する制御器を有してもよい。

- 5 レベル調節機構は、導圧管を有してもよいし、又は、圧電素子を有してもよい。

気液分離器 102 には、弁 108 が接続していて、弁 108 が開放した際に、気液分離器 102 の内部の処理水を容器 110 に放出することができる。レベル調節機構 106 からの信号により、弁 108 の開閉を制御することが好ましい。

- 10 気液分離器 102 は、気液分離器の内部の圧力を一定の範囲に調節する圧力調節機構を有していてもよい。かかる圧力調節機構は、例えば、気相の圧力を検出するための圧力検出器、ガスを排出するための弁、圧力検出器からの信号で弁を制御する制御器を有してもよい。圧力調節機構は、例えば、被処理物が液相を保持する圧力以上であって、反応容器 1 及び気液分離器 102 を安全に運転できる圧力以下の圧力に調節する。圧力検出器は、圧電素子を有していてもよい。

- 15 気液分離器 102 には、弁 109 が接続していて、弁 109 が開放した際に、気液分離器 102 の内部の気体を大気に放出することができる。図示していない圧力調節機構からの信号により、弁 109 の開閉を制御することが好ましい。

次に、図 13 に示される水熱電気分解処理システムを用いる水熱電気分解方法を説明する。

- 20 まず、始動時の説明をする。反応容器 1 には未だ液体は導入されていないものとする。まず、室温、大気圧中、水道水ライン 68 より、被処理物ライン 60 に水道水を導入する。そして、高圧ポンプ 66 により、水道水を、熱交換器 70、加熱装置 76、次いで、反応容器 1 に導入する。水道水が加熱装置 74 に導入された後に、加熱装置 74 を始動し、水道水を加熱する。そして、加熱された水道水
- 25 水を反応容器 1 から排出ライン 100 に排出し、気液分離器 102 を経て、容器 110 に排出する。

システムが安定した後に、水道水ラインから被処理物ライン 60 への水道水の供給を停止するとともに、供給タンク 61 から被処理物ライン 60 への被処理物の供給を開始する。被処理物のハロゲン化物イオン濃度等は、予め、ハロゲン化

物ライン 6 3 等により調整する。加熱装置 7 4 で被処理物の加熱を継続しつつ、被処理物を反応容器 1 に導入する。また、酸化剤ライン 8 0 より、酸化剤を反応容器 1 に導入する。

被処理物及び酸化剤が反応容器 1 に導入された後に、電気分解を開始する。即ち、直流電源 9 4 のスイッチをオンにし、水熱電気分解装置 1 の陽極及び陰極に直流電流を供給する。高温、高圧下、液相に維持されている被処理物が反応容器 1 の内部を移動し、この移動の際に水熱反応と電気分解とが同時に進行する。水熱反応及び電気分解に伴って熱が発生するので、加熱装置 7 4 による加熱の度合いを適宜、低下させる。

- 10 反応時間は、被処理物中の還元性物質が酸化分解されるのに十分な時間とする。例えば、1 秒～4 8 時間であり、1 分～2 4 時間が好ましい。また、反応時間は、5 時間以下が更に好ましく、2 時間以下が更に好ましい。反応時間は、反応容器 1 の体積と被処理物の移動速度により調整する。

- 15 反応を停止する場合には、供給タンク 6 1 から被処理物ライン 6 0 への流入を停止し、水道水ラインから水道水を被処理物ライン 6 0 に導入する。また、酸化剤ライン 8 0 から酸化剤を反応容器 1 に導入することを停止する。次いで、直流電源のスイッチをオフにして、電気分解を停止する。次いで、加熱装置 7 4 の出力を低下させ、反応容器 5 0 に流入する被処理物の温度を徐々に低下させる。

- 20 以上説明したように、本発明の第 1 の形態及び第 2 の形態によれば、水熱電気分解における電極の表面積を増大させることによって、水熱電気分解反応による被処理物の処理を効率よく行うことができる。

しかしながら、上記のアプローチによっても、反応容器内のスペースには限りがあることから、電極の表面積の増大には限りがあり、電極の表面積を所望の程度に増加させることは必ずしも容易でない。

- 25 そこで、本発明者らは、上記に説明した本発明の別態様として、実質的に電極の表面積を容易かつ安価に増加させる方法と装置を更に提供する。

即ち、本発明者らは、被処理物に導電性粒子を含有させ、好ましくは、被処理物に導電性粒子を懸濁させることによって、被処理物を電気分解する際に、被処

理物中に存在する導電性粒子を実質的に電極として作用させることができ、実質的に電極の表面積を増加させることができることを見出した。

このように、被処理物中に導電性粒子を含ませると、水熱電気分解装置において、本来の陰極と本来の陽極との間に、水及び導電性粒子を含む被処理物が配置
5 される。そして、本来の陰極と本来の陽極との間に直流電圧を印可すると、電場の作用によって、個々の導電性粒子において、本来の陰極に向けた表面が陽極として作用し、一方、本来の陽極に向けた表面が陰極として作用する。従って、本来の陰極と、個々の導電性粒子の陽極として作用する表面との間に、局所的に電流が流れることになり、また、本来の陽極と導電性粒子の陰極として作用する表
10 面との間にも局所的に電流が流れることになる。更に、例えば、二つの導電性粒子が互いに接触することなく、近傍に位置している場合において、一方の導電性粒子の陽極表面が、他方の導電性粒子の陰極表面と向かい合っているときなどには、その陽極表面とその陰極表面との間に局所的に電流が流れることになる。このように二つの導電性粒子の間に限られず、互いに離散している多数の導電性粒
15 子の間にも、ある導電性粒子の陽極表面と、別の導電性粒子の陰極表面との間に相互に電流が流れると思われる。

このように、被処理物中に導電性粒子が存在する場合には、被処理物中に導電性粒子が存在しない場合と比べて、本来の陽極と本来の陰極との間に流れる電流が増加し、かつ、本来の陽極と本来の陰極との間の電圧が増加することになる。
20 従って、本来の陽極及び本来の陰極の表面積を増やさなくても、多量の電力を被処理物に供給することができ、水熱電気分解装置の処理能力並びに処理効率を大幅に向上させることができる。

即ち、本発明の第3の形態においては、水と還元性物質と導電性粒子とを含む被処理物に、100℃以上前記被処理物の臨界温度以下の温度にて、前記被処理
25 物中の水が液相を維持する圧力の下、電気分解を行う工程を有すること特徴とする、水熱電気分解方法が提供される。

本発明の第3の形態においては、前記導電性粒子が前記被処理物中で懸濁しており、かつ、前記被処理物が強酸イオンを更に含むことが好ましい。また、前記

電気分解工程の後に、前記導電性粒子を分離する工程と、分離された導電性粒子を前記被処理物に再び添加する工程とを有することが好ましい。

- 5 本発明の更に他の形態によれば、水と還元性物質とを含む被処理物に導電性粒子を供給する供給装置と、導電性粒子が供給された被処理物に、100℃以上前記被処理物の臨界温度以下の温度にて、前記被処理物中の水が液相を維持する圧力の下、電気分解を行うための反応室と、を有する水熱電気分解装置が提供される。かかる装置においては、前記反応室が一对の電極を有することが好ましく、一方が陽極として作用し、他方が陰極として作用することが更に好ましい。

- 10 本発明の更に他の形態においては、水と還元性物質と導電性粒子とを含む被処理物に、100℃以上前記被処理物の臨界温度以下の温度にて、前記被処理物中の水が液相を維持する圧力の下、直流電流を供給する反応室と、処理後の被処理物から導電性粒子を分離するための分離装置と、を有することを特徴とする水熱電気分解装置が提供される。前記反応室が、一对の電極を有することが好ましく、一方が陽極として作用し、他方が陰極として作用することが更に好ましい。

- 15 かかる水熱電気分解装置においては、前記分離装置が、液体サイクロンを含むことが好ましい。また、前記分離装置が、フィルタ装置を含むことが好ましい。

- 本発明の第3の形態においては、被処理物中に導電性粒子が含まれる。このように導電性粒子を含んだ被処理物を水熱電気分解装置に通して、本来の陰極と本来の陽極との間に直流電圧を印可すると、電場の作用によって、個々の導電性粒子において、本来の陰極に向いた表面が陽極として作用し、一方、本来の陽極に向いた表面が陰極として作用する。従って、本来の陰極と、個々の導電性粒子の陽極として作用する表面との間に、局所的に電流が流れることになり、また、本来の陽極と導電性粒子の陰極として作用する表面との間にも局所的に電流が流れることになる。更に、例えば、二つの導電性粒子が互いに接触することなく、近傍に位置している場合において、一方の導電性粒子の陽極表面が、他方の導電性粒子の陰極表面と向かい合っているときなどには、その陽極表面とその陰極表面との間に局所的に電流が流れることになる。このように二つの導電性粒子の間に限られず、互いに離散している多数の導電性粒子の間にも、ある導電性粒子の陽極表面と、別の導電性粒子の陰極表面との間に相互に電流が流れると思われる。
- 20
- 25

従って、本来の陽極及び本来の陰極の表面積を増やさなくても、実質的に電極の表面積を増加させることができる。

- 導電性粒子は、被処理物に懸濁されることが好ましい。これにより、固体である導電性粒子が被処理物とともに流動することができる。また、導電性粒子が、
- 5 電極の表面に付着し難くなる。

- 導電性粒子は、その全体が導電性物質から構成されていてもよい。また、導電性物質の表面が別個の導電性物質で被覆されている粒子でもよいし、導電性でない物質の表面が導電性物質で被覆されている粒子でもよい。また、導電性粒子の表面が腐食等により、絶縁性の酸化物等が生成していても、粒子全体として導電
- 10 性であれば、導電性粒子である。

- 導電性物質から構成されている粒子としては、例えば、炭素からなる粒子、金属からなる粒子、導電性酸化物からなる粒子が挙げられる。炭素からなる粒子としては、例えば、グラファイトからなる粒子が挙げられる。金属からなる粒子にはいわゆる金属粉が含まれ、例えば、鉄粉、銅粉、銀粉、ニッケル粉、コバルト
- 15 粉、アルミニウム粉等が挙げられる。導電性酸化物からなる粒子としては、フェライト、酸化ルテニウムからなる粒子が挙げられる。コスト的には鉄粉、アルミニウム粉が好ましい。また、鉄粉には、鋼（ステンレス鋼を含む）、鋳鉄等を機械加工をした際に発生する屑を粉状にしたものも含まれる。

- 導電性物質の表面が別個の導電性物質で被覆されている粒子としては、金属粒子の表面を異なる金属薄膜が被覆している粒子、例えば、銅粒子の表面が白金で被覆されている粒子が挙げられる。
- 20

導電性でない物質の表面が導電性物質で被覆されている粒子としては、酸化物粉体の表面に金属薄膜を被覆している粒子が挙げられる。例えば、酸化アルミニウム粒子の表面が銅でコーティングされている粒子である。

- 25 導電性又は導電性でない酸化物粉体の表面が導電性酸化物で被覆している粒子もある。例えば、酸化ジルコニウム粒子の表面が酸化イリジウムで被覆されている粒子、二酸化ケイ素粒子の表面が酸化ルテニウムで被覆されている粒子が挙げられる。

更に、合成高分子ポリマーの表面に金属又は導電性酸化物が被覆されている場合も挙げられる。例えば、ポリエチレングリコールからなるポリマーの表面が酸化ルテニウムで被覆されている粒子である。

5 被覆の方法としては、金属薄膜の場合には、電気メッキ、無電解メッキ、スパッタリング、物理蒸着、化学蒸着等が挙げられる。導電性酸化物薄膜の場合には、焼成、スパッタリング、物理蒸着、化学蒸着等が挙げられる。

これらの導電性粒子には、ハロゲン化物イオン等の強酸イオンの存在下、高温、高圧で電流が流れることになる。導電性粒子は、このような条件で、溶解、腐食するものを使い捨てにしてもよいし、化学的に安定であるものを再利用してもよい。
10 使い捨てにする場合には、コスト的には鉄粉、アルミニウム粉などが好ましい。再利用する場合には、耐食性に優れており、導電性粒子に電流が流れた場合であっても、不溶性を示すことが好ましい。

再利用する場合では、導電性粒子が導電性物質から構成されている場合の導電性物質、又は、導電性粒子の表面が導電性物質で被覆されている場合の導電性物質が、ルテニウム、イリジウム、白金、パラジウム、ロジウム、銅、ニッケル、
15 錫若しくはこれらの酸化物又はフェライトを有することが好ましい。

ルテニウム、イリジウム、白金、パラジウム、ロジウム、銅、ニッケル、錫は、金属元素そのものであってもよいし、酸化物であってもよい。また、これらの金属の合金も好適に用いられる。合金としては、例えば、白金-イリジウム、ルテニウム-
20 ニウム-錫、ルテニウム-チタンなどが挙げられる。実施態様によっては、特に、パラジウム、ルテニウム、白金とイリジウムとの合金を主成分とするものが好ましい。

導電性粒子の形状には制限がなく、球形状、棒形状、円盤形状、T字形状、ドーナツ形状、筒形状、ファイバー等であってもよい。また、中空の粒子であってもよい。
25

導電性粒子の寸法は、陽極と陰極との間隔よりも短いことが好ましい。導電性粒子の平均寸法(size)は、1 cm以下が好ましく、5 mm以下が更に好ましく、1 mm以下が更に好ましく、0.5 mm以下が更に好ましい。例えば、導電性粒子が球形状の場合には、その寸法は、その直径を意味する。導電性粒子

が棒形状、筒形状の場合には、その寸法は、その長さを意味する。導電性粒子の寸法は、均一であってもよいし、大きなばらつきがあってもよい。

- 導電性粒子が棒形状、筒形状の場合には、棒又は筒の直径に対する長さ、即ち、直径を1としたときのその長さは、0.1～1000であることが好ましく、0.5～100であることが更に好ましい。

- 被処理物中には、0.01重量%以上の導電性粒子を含有させることが好ましく、0.1重量%以上の導電性粒子を含有させることが更に好ましい。導電性粒子が0.01重量%という微量、被処理物中に存在する場合であっても、本来の電極の間に流れる電流を増加することができ、また、その間の電圧を増加することができる。

被処理物中には、30重量%以下の導電性粒子を含有させることが好ましく、10重量%以下の導電性粒子を含有させることが更に好ましい。導電性粒子の含有量が30重量%より多い場合には、被処理物の流動性に悪影響を与え、また、電極間でショートする確率が顕著に高くなる。

- 被処理物中の導電性粒子の含有量は、反応室に被処理物を供給する供給ラインでの含有量である。反応室の内部では、導電性粒子は必ずしも均一に分布してないので、その含有量を正確に求めることが困難だからである。例えば、反応室が筒形状を有していて、被処理物を下部から上部に移送させる場合には、反応室の下部では、導電性粒子の濃度が高くなる傾向にある。

- 上記に説明した本発明の第3の形態について、図14を参照しつつ詳細に説明する。なお、図14においては、図13に示す処理システムと同様に操作され、機能する箇所については同じ参照番号で示し、説明を省略する。

- 図14に示される本発明の第3の形態に係る水熱電気分解処理システムにおいては、反応容器50に、被処理物を供給するための被処理物ライン60が接続する。被処理物ライン60は、供給タンク61、高圧ポンプ66、熱交換器70、及び、加熱装置74を有することが好ましく、被処理物はこの順序に移動することができる。

供給タンク61に導電性粒子を供給する供給装置130が設けられている。供給装置130は、導電性粒子138を保持するホッパ132と、導電性粒子13

8を定量的に供給タンク61に供給するスクリーフィーダー134とを含む。スクリーフィーダー134にはモータ136が連結されている。モータ136の回転に伴って、スクリーフィーダー134のスクリーが回転し、一定量の導電性粒子138を供給タンク61に導入することができる。ホッパ132には、原料の導電性粒子を添加してもよいし、フィルター装置114により分離された導電性粒子112を添加してもよい。供給タンク61には、攪拌装置61aが設けられており、被処理物を均一に攪拌することができる。

被処理物供給ライン60における各構成部材に関しては、図13について説明した動作と同様であるので、説明を省略する。

10 被処理物ライン60と別個に、酸化剤ライン80を設けることが好ましい。酸化剤ラインの各構成部材に関しても、図13について説明した動作と同様であるので、説明を省略する。

反応容器50は、軸方向に長い筒形状を有することが好ましく、円筒形状を有することが好ましい。反応容器50の内部には、電気分解をするための一对の電極が設けられている。反応容器50が金属製の内壁50sを有し、この内壁が、陰極として作用することができる。例えば、反応器50の壁部全体が金属製であってもよい。反応容器50の内部には、棒形状の陽極92を有する。陽極92の外側面も円筒形状を有し、陽極92の中心軸が反応器50の中心軸と実質的に一致することが好ましい。陽極92は、メッシュ又は網を円筒形状に形成したものでもよいし、板を円筒形状に形成したものでもよい。

25 直流電源94の正極端子96及び負極端子97は、それぞれ、ライン98、99を介して、陽極92及び陰極50sに接続される。陽極に通電するためのライン98は、反応器50の上部51bを貫き、ライン98は、反応器50と絶縁部材56により絶縁されている。反応器50が金属製の場合には、ライン99は反応器50に直接、接続されていればよい。

反応容器50は、図示されていない加熱装置で加熱されてもよい。加熱装置は、例えば、電気ヒーターであってもよい。また、バーナー等で反応容器の外側を直接、加熱してもよい。

図 1 4 に示す処理システムにおいては、反応容器に、導電性粒子を回収する回収ライン 1 2 0 が接続している。回収ライン 1 2 0 は、被処理物から導電性粒子を分離する分離装置 1 2 2 を含む。これにより、導電性粒子を系外に排出することなく、再利用することができる。

- 5 即ち、反応容器 5 0 の上部に、ライン 1 2 1 を介して、処理液から固体粒子を分離するための分離装置 1 2 2 が接続している。分離装置 1 2 2 としては、例えば、遠心力で導電性粒子を分離する液体サイクロンを用いることができる。液体サイクロンでは、導電性粒子は、その底部に沈殿する。分離装置 1 2 2 では、処理液中の導電性粒子の全てを分離する必要は必ずしもない。分離装置 1 2 2 が導電性粒子のほとんどを除去し、残りをフィルター装置 1 1 0 で除去してもよい。

- 10 分離装置 1 2 2 はライン 1 2 4 を介してポンプ 1 2 6 に接続していて、ポンプ 1 2 6 はライン 1 2 7 を介して反応容器 5 0 の底部に接続する。分離装置 1 2 2 が液体サイクロンの場合には、導電性粒子を含む濃厚なスラリーが得られる。この濃厚なスラリーをポンプ 1 2 6 により、反応容器 5 0 の底部に導入することができる。

分離装置 1 2 2 には、少なくとも一部の導電性粒子が除去された処理水を排出するための排出ライン 1 0 0 が接続している。排出ライン 1 0 0 は、熱交換器 8 7 / 7 0 と、気液分離器 1 0 2 と、フィルター装置 1 1 0 とを有することが好ましく、反応容器 5 0 で水熱分解された処理水が、この順序で移送され得る。

- 20 排出ライン 1 0 0 には、気液分離器 1 0 2 が接続していることが好ましい。気液分離器 1 0 2 は、処理水中の気体と液体とを分離する。気液分離器 1 0 2 の内部では、一定のレベル 1 0 4 にまで処理水が保持されている。このレベル 1 0 4 の上部の空間と、このレベル 1 0 4 の下部の処理水との間で導圧管を設け、この導圧管に、気液界面又はスラリーレベルを定めるためのレベル検出器を設けてもよい。レベル検出機構（図示されていない）は、気体と液体との差圧でレベル 1 0 4 を測定し、処理水の排出量は、このレベル 1 0 4 が一定ないし一定の範囲になるように行ってもよい。なお、気液分離器 1 0 2 において、レベル 1 0 4 の上部と下部との各々に、圧力を電気信号に変換する圧電素子を設け、この電気信号がレベル検出器に入力されることにより、差圧を検出してもよい。

気液分離器 102 は、気液分離器 102 の内部の被処理物のレベルを一定の範囲に定めるレベル調節機構 106 を有することが好ましい。かかるレベル調節機構は、ガスと被処理物の圧力の差を検出するためのレベル検出器、被処理物を排出するための弁、レベル検出器からの信号で弁を制御する制御器を有してもよい。

- 5 レベル調節機構は、導圧管を有してもよいし、又は、圧電素子を有してもよい。

気液分離器 102 には、弁 108 が接続していて、弁 108 が開放した際に、気液分離器 102 の内部の処理水をフィルター装置 114 に放出することができる。レベル調節機構からの信号により、弁 108 の開閉を制御することが好ましい。

- 10 気液分離器 102 は、気液分離器の内部の圧力を一定の範囲に調節する圧力調節機構を有していてもよい。かかる圧力調節機構は、例えば、気相の圧力を検出するための圧力検出器、ガスを排出するための弁、圧力検出器からの信号で弁を制御する制御器を有してもよい。圧力調節機構は、例えば、フィルター装置 114 が円滑な分離をする圧力に設定することが好ましい。圧力検出器は、圧電素子
- 15 を有していてもよい。

気液分離器 102 には、弁 109 が接続していて、弁 109 が開放した際に、気液分離器 102 の内部の気体を大気に放出することができる。図示していない圧力調節機構からの信号により、弁 109 の開閉を制御することが好ましい。

- 図 14 に示す態様においては、気液分離器 102 の圧力と反応容器 50 の圧力
- 20 とは別々に制御を行い、反応容器 50 の圧力を、水熱電気分解において液相を維持できる圧力に設定し、気液分離機 102 の圧力をフィルター装置 114 において誘電性粒子を円滑に濾過できる圧力に設定することが好ましい。

- 例えば、反応容器 50 の圧力を調整するために、流路 100 に圧力センサーを備えた圧力調整バルブ 115 を別個に設けることが特に好ましい。これにより、
- 25 バルブ 115 の一次側まで反応容器 50 の圧力が維持されることとなり、反応容器 50 の圧力調整はバルブ 115 を制御して行うことができる。

フィルター装置 114 は、液体を濾過することにより、液体中に含まれる導電性粒子 112 を液体から分離する。フィルター装置 114 としては、例えば、フィルタープレスを用いることができる。導電性粒子が除去された排水は、容器 1

16に貯蔵される。一方、この導電性粒子112は供給装置130に供給して、再利用することができる。

次に、図14の水熱電気分解処理システムを用いる水熱電気分解方法を説明する。

- 5 供給装置130が所望量の導電性粒子138を供給タンク61に供給し、被処理物中の導電性粒子の含有量を調整する。ハロゲン化物ライン63等からハロゲン化物イオン源を供給タンク61に導入し、その濃度を調整する。攪拌器61aで被処理物を攪拌し、均一化する。

- 10 高圧ポンプ66を用いて、供給タンク61中の被処理物を移送させ、熱交換器70で被処理物を予熱し、加熱装置74で被処理物を更に加熱し、次いで、被処理物を反応容器50に導入する。

一方、酸化剤ライン80から、酸化剤として作用する圧縮空気を熱交換器87で予熱し、反応容器50に導入する。

被処理物及び酸化剤が反応容器50に導入された後に、電気分解を開始する。

- 15 即ち、直流電源94のスイッチをオンにし、陽極92及び陰極として作用する反応容器50に直流電流を供給する。高温、高圧下、液相に維持されている被処理物が反応容器50を下方から上方に移動する。この際に水熱反応と電気分解とが同時に進行し、被処理物中の還元性物質を酸化分解する。また、強酸イオン及び導電性粒子が含まれているので、直流電流が被処理物中を容易に流れることができる。水熱反応及び電気分解に伴って、熱が発生するので、加熱装置74による加熱する温度を適宜、低下させる。
- 20

- 反応時間は、被処理物中の還元性物質が酸化分解されるのに十分な時間とする。例えば、1秒～48時間であり、1分～24時間が好ましい。また、反応時間は、5時間以下が更に好ましく、2時間以下が更に好ましい。反応時間は、反
25 容器50の体積と被処理物の移動速度により調整する。

処理液52は分離装置122に導入され、処理液中の導電性粒子が分離される。分離された導電性粒子が若干の液体とともに、ポンプ126により反応容器50に導入される。

一方、分離装置 122 から排出される処理液はライン 101、熱交換器 87、ライン 102、熱交換器 70、弁 108 を通り、気液分離装置 102 に導入される。

5 気体は弁 109 から放出され、液体は弁 107 からフィルター装置 110 に導入される。フィルター装置 110 は導電性粒子を更に除去し、排水を容器 116 に排出する。

10 なお、図 14 に示す本発明の態様においても、水熱電気分解反応器として、図 1 ～ 12 によって説明したような本発明の第 1 及び第 2 の形態に係る水熱電気分解装置を用いることができる。被処理物中に導電性粒子を含ませて、図 1 ～ 図 12 に示すような複数の反応室を有する水熱電気分解装置を用いて水熱電気分解を行えば、水熱電気分解における電気分解反応効率が更に向上し、より一層効率よく水熱電気分解処理を行うことが可能になる。但し、この場合には、被処理物中に含ませる導電性粒子の大きさは、各反応室における陽極と陰極との間の距離よりも小さいことが必要である。

15 以下において、本発明の第 3 の形態に係る水熱電気分解装置を実施例で説明する。しかし、本発明は、下記実施例に限定されるものではない。

実施例 1

20 図 15 に示すオートクレーブを用いて実験を行った。オートクレーブは、SUS304 製の容器本体 200 及び蓋 201 から構成され、内容積は 300 ml であった。蓋 201 には排気口 203 が形成され、バルブ 204 を具備する排気管 205 に接続されていた。また、容器は、パージガスを導入するためのガス導入口 212 を具備していた。

25 オートクレーブ内に、円筒形の白金板電極（外径 26.5 mm、高さ 60 mm、有効面積 50 cm²、初期乾燥重量 35.525 g）206 を配置した。図 6 では、電極 206 は、網状の部材として描かれているが、本実施例では、網状ではなく、板状になっていた。電極 206 は外部電源 210 の陽極に接続され、また、蓋 201 を外部電源の陰極に接続することにより、容器本体の内壁面を陰極として用いた。

まず、酢酸 4, 000 mg/L (TOC 濃度 1, 600 mg/L)、NaCl 濃度 2 wt % 及び水道水からなる模擬廃液を調整した。一方、二酸化珪素からなる球状粒子 (ガラスビーズ) に無電解メッキによって銅を被覆し、導電性粒子を調整した。この導電性粒子では、該導電性粒子の全重量に対して 5 wt % の銅を含む。また、この導電性粒子の平均粒子径が 0.2 mm であった。そして、上記
5 模擬廃液 150 mL に、上記導電性粒子 5 g を添加した。

室温において、オートクレーブ内に導電性粒子 5 g を含む上記模擬廃液 150 mL を入れた。次いで、3 MPa 相当のアルゴンを圧入し、オートクレーブを密閉した。ついで、攪拌インペラー 202 によって攪拌しながら、加熱ヒータ 21
10 1 によって内容物 220 を 250℃ に昇温した。250℃ 到達した時に、6 A の直流定電流を電極間に通電することを開始し、250℃ において 15 分間 6 A の直流定電流を通電し続けた。このときの平均電圧は 7.50 V であった。15 分経過後に通電を停止して、室温に冷却した。処理液中の前記導電性粒子を沈降させた後、上澄み液を採取して分析した。

15 この上澄み液は無色、無臭であり、TOC が 30.4 mg/L であった。かくして、TOC 分解率が 98.1 % にも達し、本発明による方法が極めて効果的であることが分かった。

比較例 1

本比較例では導電性粒子を模擬廃液に添加しない点を除き、上記実施例と同一
20 の条件において模擬廃液を処理した。250℃ において、6 A の直流電流を電極間に通電したときに、平均電圧は 3.04 V と低かった。処理後液の TOC は 95.4 mg/L であり、TOC 分解率が 40.3 % に留まった。

このように、被処理液中に導電性粒子が懸濁しているときには、被処理液に流れる電流は増加し、かつ、電極間の電圧は増加する。

25

産業上の利用可能性

本発明の各種態様に係る水熱電気分解装置及び方法によれば、大量の廃液を効率良く処理でき、さらには連続的に処理することもできる。本発明の水熱電気分

解装置は、連続処理に好適に用いられるが、バッチ処理、準連続処理にも適用することができる。

請求の範囲

1. 水及び還元性物質を含有する被処理物を高温高压下で電気分解するための反応室を備えた水熱電気分解装置であって、
- 5 上記反応室は、チャンバーを画定し、かつ、一对の電極を有し、上記反応室中のチャンバーの体積 1 m^3 あたりの上記チャンバーに曝される一对の上記電極の総表面積は、 0.05 m^2 以上であることを特徴とする水熱電気分解装置。
2. 下方に被処理物を導入する導入口と、上方に処理物を排出する排出口とを有する請求項 1 記載の水熱電気分解装置。
- 10 3. 上記反応室は、2 以上の筒形状の反応室を有し、前記反応室の各々は陰極として作用する金属製の内壁を有し、前記反応室の各々の内部に、陽極が配置されている請求項 1 に記載の水熱電気分解装置。
4. 前記一对の電極が、
同心円筒形状を有する 2 以上の第 1 側壁と、前記第 1 側壁を互いに連結する第
15 1 連結部材とを有する第 1 電極と、
同心円筒形状を有する 2 以上の第 2 側壁と、前記第 2 側壁を互いに連結する第
2 連結部材とを有する第 2 電極と、
を有していて、
前記第 1 側壁と前記第 2 側壁との間に被処理物の流路を形成するように、前記
20 第 1 電極の前記第 1 側壁と前記第 2 電極の前記第 2 側壁とが交互に配置されている請求項 1 に記載の水熱電気分解装置。
5. 高压ポンプを有し、前記反応室に被処理物を供給する被処理物ラインと、
前記反応室に酸化剤を供給する酸化剤ラインと、
25 前記反応室から処理物を排出する排出ラインと、
を更に有する請求項 1 に記載の水熱電気分解装置。
6. 水と還元性物質とを有する被処理物を請求項 1 ～ 5 の何れかに記載の水熱電気分解装置の反応室に導入する工程と、

前記反応室中、100℃以上前記被処理物の臨界温度以下の温度にて、前記被処理物中の水が液相を維持する圧力の下直流電流を供給する工程と、

前記反応室から処理物を排出する工程と、
を有することを特徴とする、被処理物の浄化方法。

- 5 7. 水と還元性物質とを含む被処理物に導電性粒子を供給する供給装置と、
導電性粒子が供給された被処理物に、100℃以上前記被処理物の臨界温度以下の温度にて、前記被処理物中の水が液相を維持する圧力の下、電気分解を行うための反応室と、

を有する水熱電気分解装置。

- 10 8. 水と還元性物質と導電性粒子とを含む被処理物に、100℃以上前記被処理物の臨界温度以下の温度にて、前記被処理物中の水が液相を維持する圧力の下、直流電流を供給する反応室と、

処理後の被処理物から導電性粒子を分離するための分離装置と、
を有することを特徴とする水熱電気分解装置。

- 15 9. 前記分離装置が、液体サイクロンを含む請求項8に記載の水熱電気分解装置。

10. 前記分離装置が、フィルタ装置を含む請求項8に記載の水熱電気分解装置。

- 20 11. 上記反応室は、2以上の筒形状の反応室を有し、前記反応室の各々は陰極として作用する金属製の内壁を有し、前記反応室の各々の内部に、陽極が配置されている請求項8～10のいずれかに記載の水熱電気分解装置。

12. 前記反応室が、

同心円筒形状を有する2以上の第1側壁と、前記第1側壁を互いに連結する第1連結部材とを有する第1電極と、

- 25 同心円筒形状を有する2以上の第2側壁と、前記第2側壁を互いに連結する第2連結部材とを有する第2電極と、
を具備する一対の電極を有して、

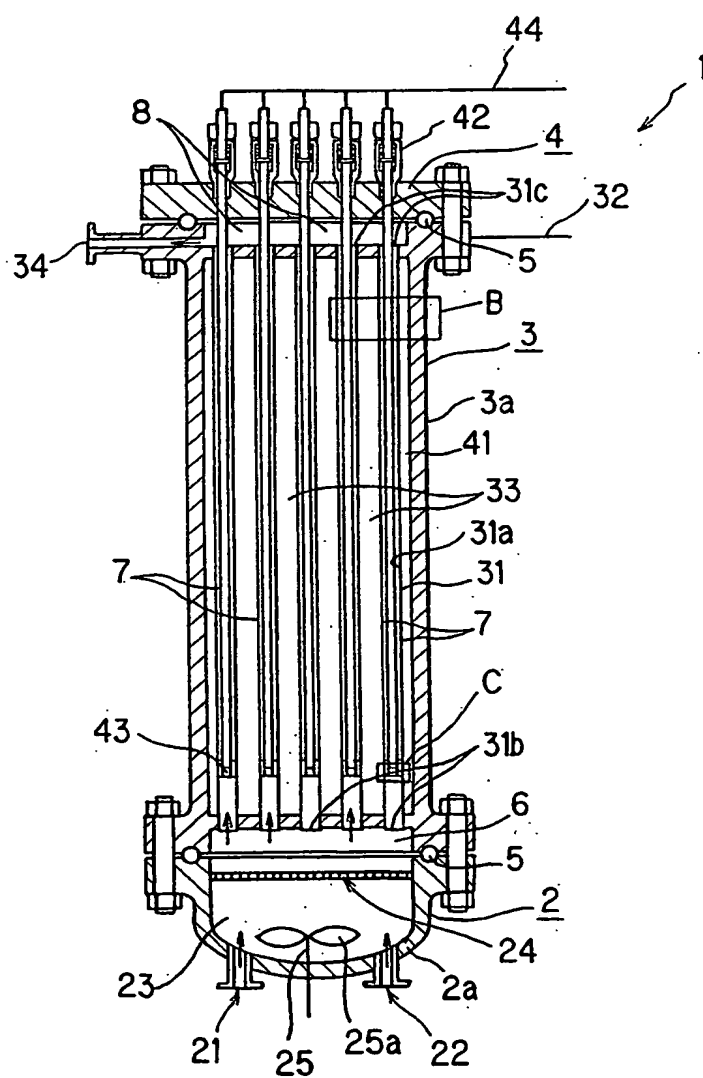
前記第 1 側壁と前記第 2 側壁との間に被処理物の流路を形成するように、前記第 1 電極の前記第 1 側壁と前記第 2 電極の前記第 2 側壁とが交互に配置されている請求項 8 ～ 10 のいずれかに記載の水熱電気分解装置。

13. 水と還元性物質と導電性粒子とを含む被処理物に、100℃以上前記被処理物の臨界温度以下の温度にて、前記被処理物中の水が液相を維持する圧力の下、電気分解を行う工程を有すること特徴とする、水熱電気分解方法。

14. 前記導電性粒子が前記被処理物中で懸濁しており、かつ、前記被処理物が強酸イオンを更に含む、請求項 13 に記載の水熱電気分解方法。

15. 前記電気分解工程の後に、前記導電性粒子を分離する工程と、分離された導電性粒子を前記被処理物に再び添加する工程とを有する請求項 13 に記載の水熱電気分解方法。

図 1



THIS PAGE BLANK (USPTO)

図 2

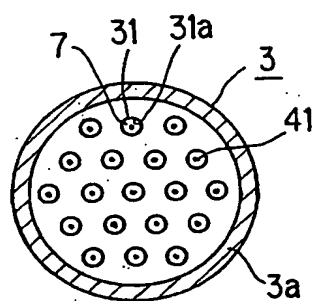
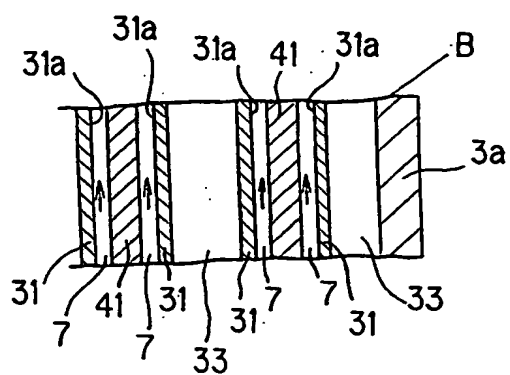
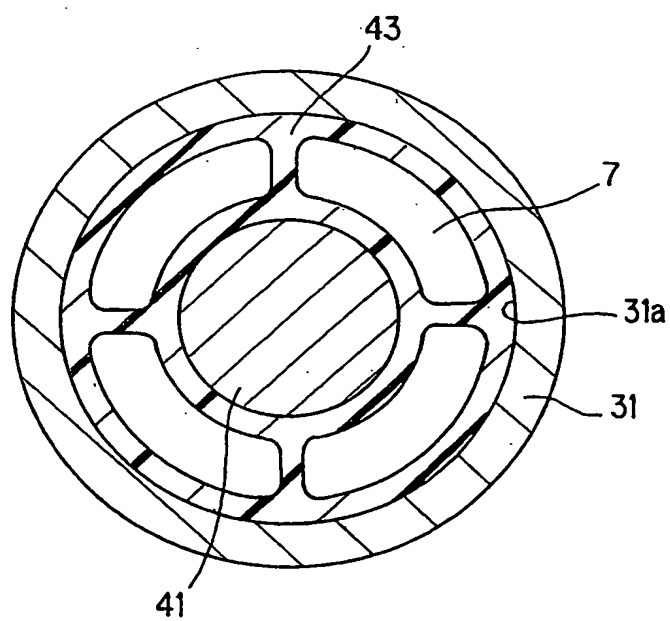


図 3



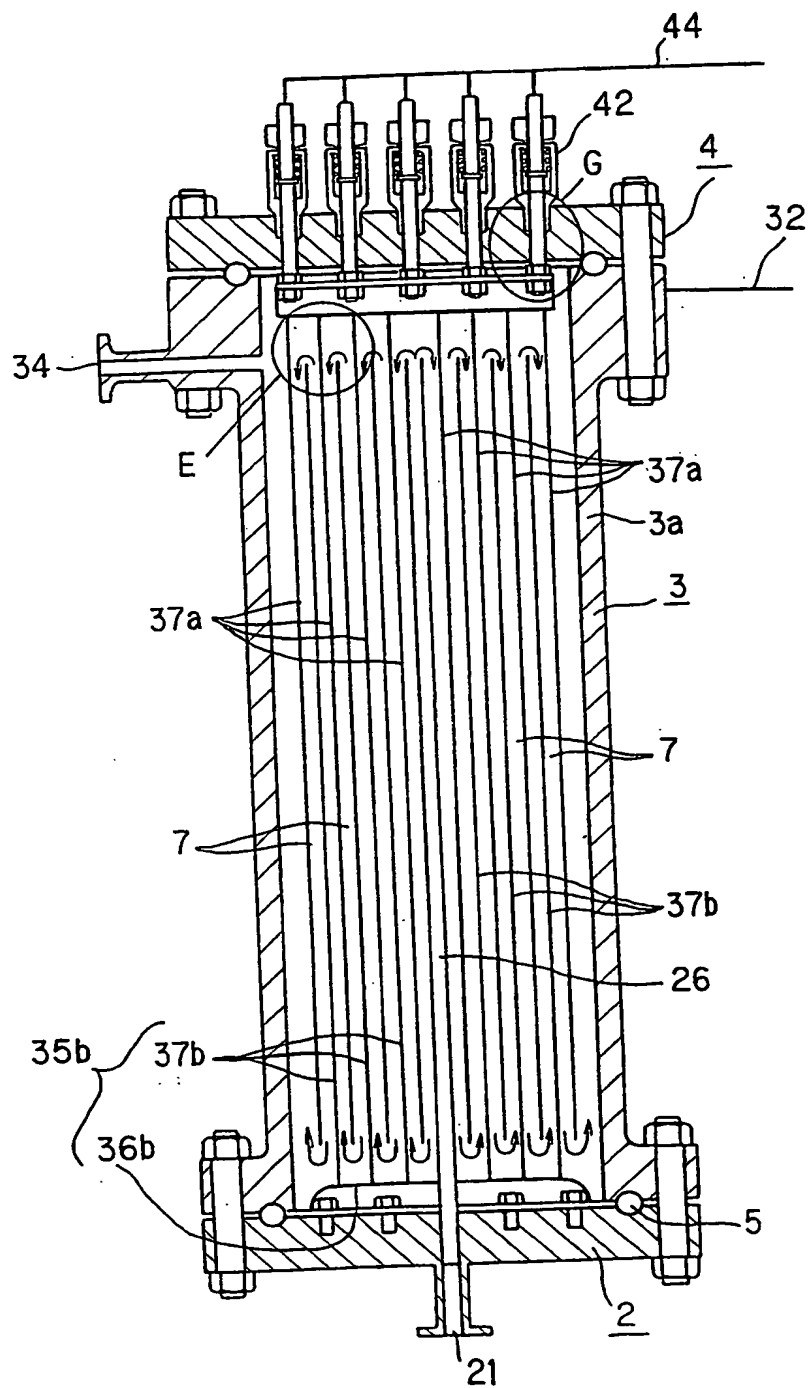
THIS PAGE BLANK (USPTO)

図 4



THIS PAGE BLANK (USPTO)

図 5



THIS PAGE BLANK (USPTO)

図 6

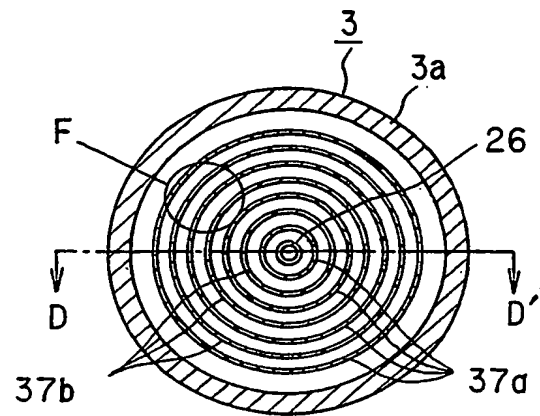
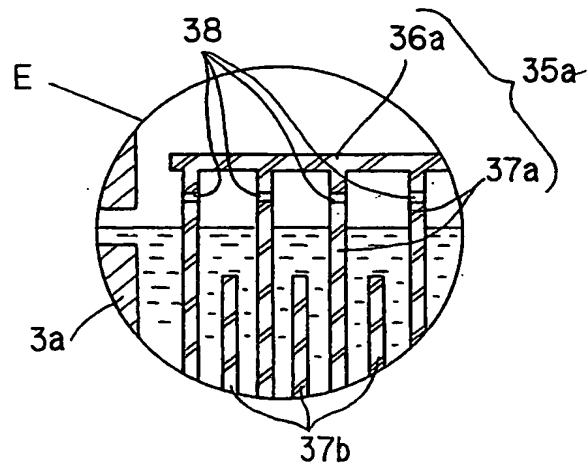


図 7



THIS PAGE BLANK (USPTO)

図 8

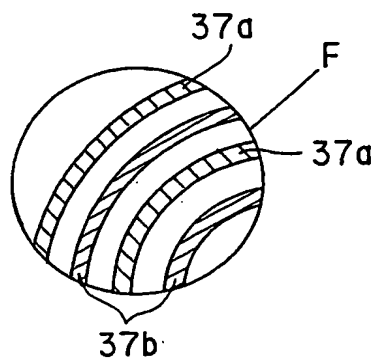
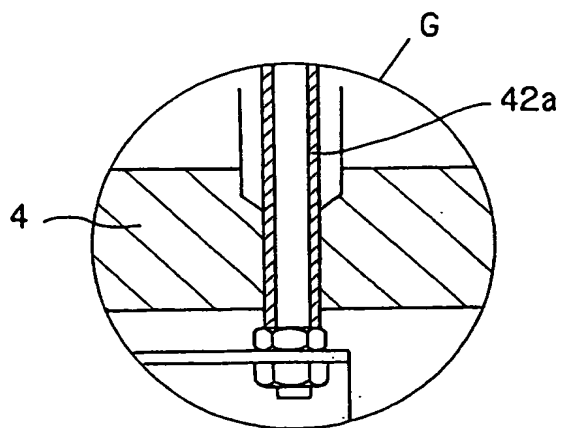


図 9



THIS PAGE BLANK (USPTO)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

図 1 0

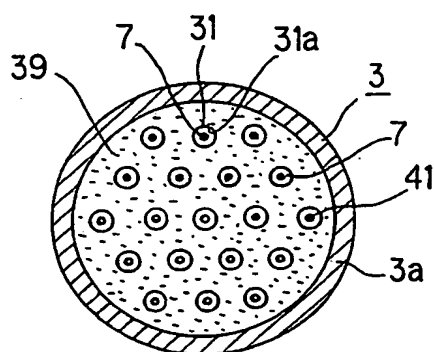
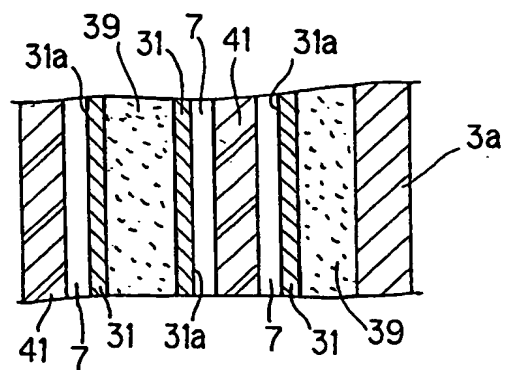
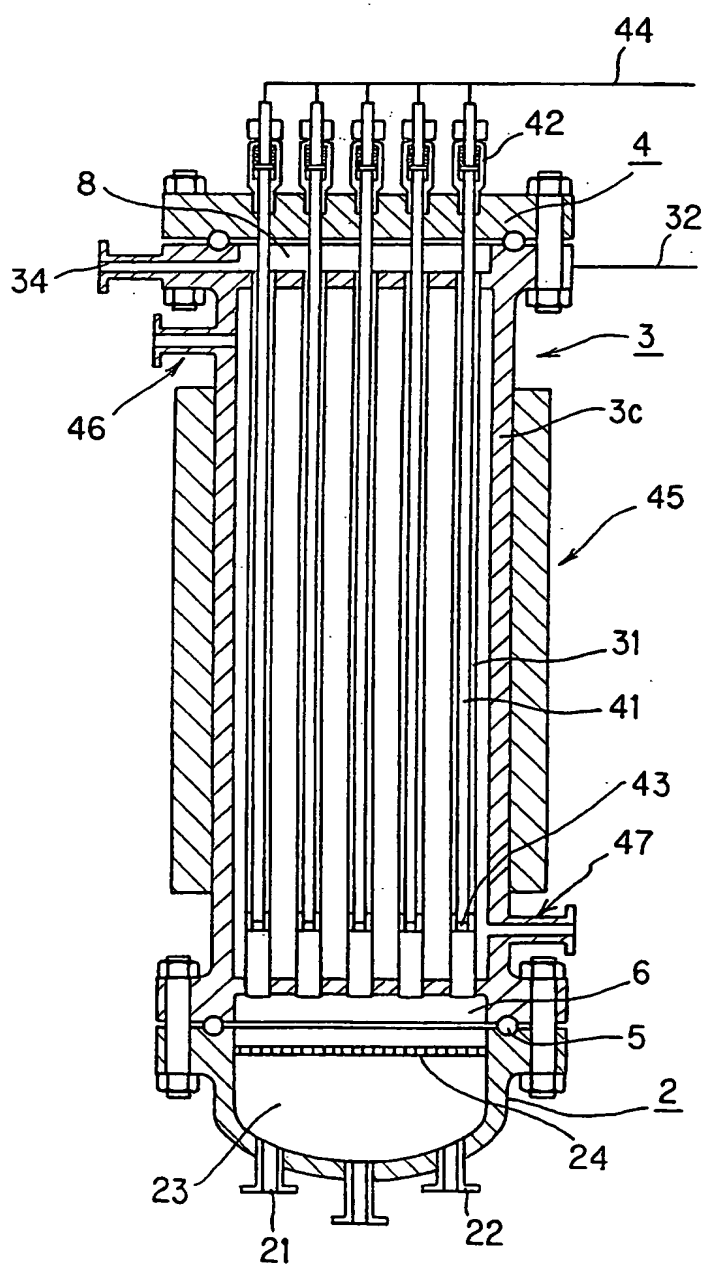


図 1 1



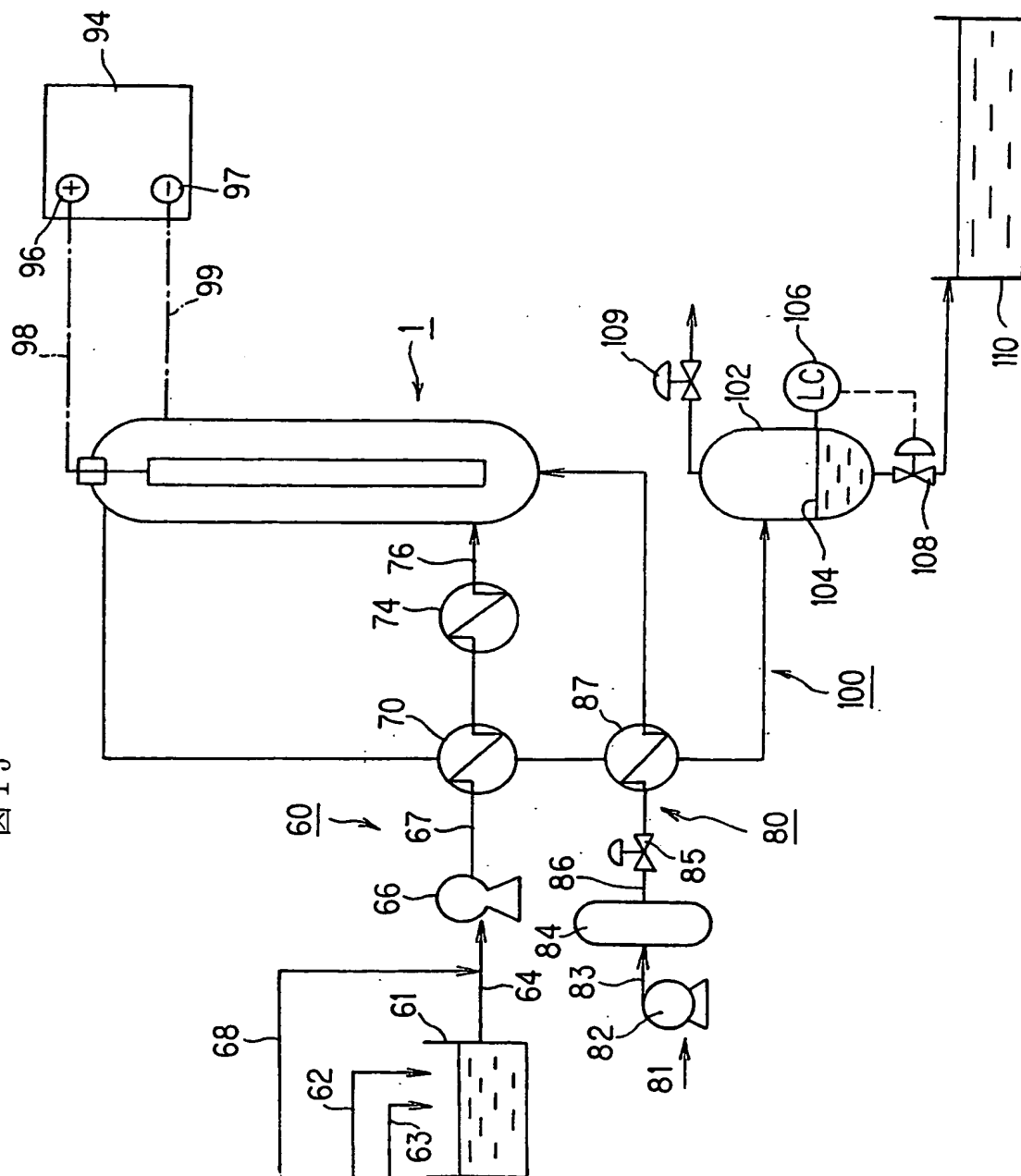
THIS PAGE BLANK (USPTO)

図 12



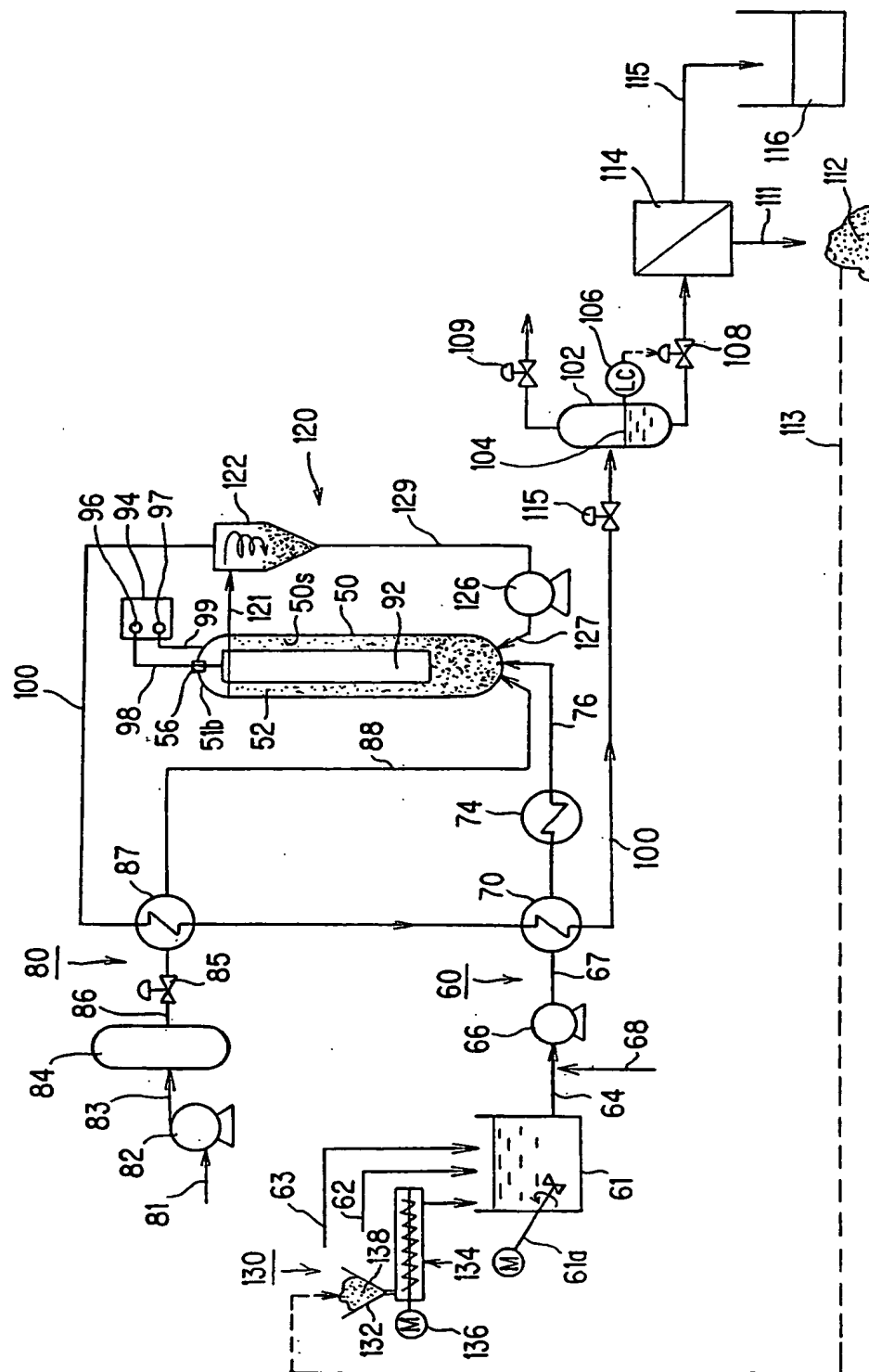
THIS PAGE BLANK (USPTO)

図 13



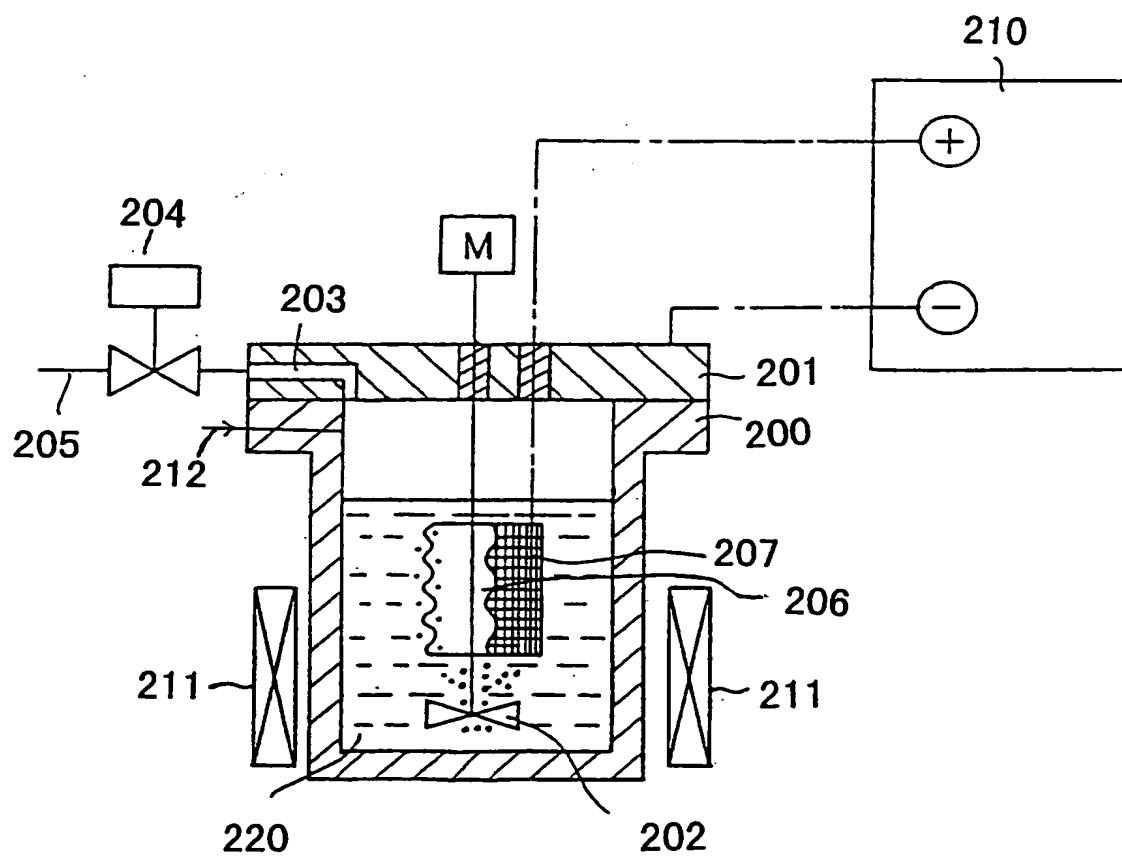
THIS PAGE BLANK (USPTO)

図 14



THIS PAGE BLANK (USPTO)

図 15



THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/00744

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ C02F1/461, 1/74, 1/02, 1/44, C25B3/02, 9/00, B01J3/00, 3/02, A62D3/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ C02F1/461, 1/74, 1/02, 1/44, C25B3/02, 9/00, B01J3/00, 3/02, A62D3/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2000	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI (DIALOG)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 09-215982, A (EBARA CORPORATION),	1, 6
Y	19 August, 1997 (19.08.97),	2, 5, 7-10,
Y	Claim 1; Column 1, lines 26 to 28; Column 4, lines 15 to	13, 15
A	28; Fig. 1 (Family: none)	3, 4, 11, 12, 14
Y	JP, 09-117782, A (The Kansai Electric Power Co., Inc.),	2, 5
A	06 May, 1997 (06.05.97),	3, 4, 6, 11, 12
	Claim 1; Column 1, lines 11 to 16; Column 5, lines 16 to	
	28; Fig. 1 (Family: none)	
Y	JP, 52-114570, A (TDK Corporation),	7-10, 13, 15
A	26 September, 1977 (26.09.77),	11, 12, 14
	page 1, lower left column, lines 9 to 20; page 2, upper	
	left column, line 16 to upper right column, line 5; page	
	2, lower left column, lines 1 to 6; page 3, lower left	
	column, line 16 to lower right column, line 7	
	(Family: none)	
A	JP, 50-155347, Y2 (Sanyo Electric Co., Ltd.),	3, 6, 11
	23 December, 1975 (23.12.75),	
	claims of utility model; Figs. 1, 2 (Family: none)	

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
14 April, 2000 (14.04.00)Date of mailing of the international search report
25 April, 2000 (25.04.00)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/00744

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US, 3975247, A (Bernard. J. Stralser), 17 August, 1976 (17.08.76), ABSTRACT, Column 6, line 53 to Column 7, line 6; Figs. 4,5 & JP, 50-103172, A	4,6,12
EX EA	WO, 99/07641, A1 (EBARA CORPORATION), 10 August, 1998 (10.08.98), page 12, lines 24 to 25; page 18, line 20 to page 24, line 7; page 27, lines 1 to 16; Claim 1-18; Figs. 1, 2 (Family: none)	1,2,5,6 3,4,7-15

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ C02F1/461, 1/74, 1/02, 1/44, C25B3/02, 9/00, B01J3/00, 3/02, A62D3/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ C02F1/461, 1/74, 1/02, 1/44, C25B3/02, 9/00, B01J3/00, 3/02, A62D3/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2000年
日本国登録実用新案公報	1994-2000年
日本国実用新案登録公報	1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI (DIALOG)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y Y A	JP, 09-215982, A (株式会社荏原製作所) 19.08月. 1997 (19.08.97) 【請求項1】, 第1欄第26行~第28行, 第4欄第15行~第28行, 【図1】 ファミリーなし	1, 6 2, 5, 7-10, 13, 15 3, 4, 11, 12, 14
Y A	JP, 09-117782, A (関西電力株式会社) 06.05月. 1997 (06.05.97) 【請求項1】, 第1欄11行~第16行, 第5欄第16行~第28行, 図1 ファミリーなし	2, 5 3, 4, 6, 11, 12

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

14.04.00

国際調査報告の発送日

25.04.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山田 泰之

4D

2928

電話番号 03-3581-1101 内線 3419

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	JP, 52-114570, A (東京電気化学工業株式会社) 26. 09月. 1977 (26. 09. 77) 第1頁左下欄第9行～第20行, 第2頁左上欄第16行～右上欄第5行, 第2 頁左下欄第1行～第6行, 第3頁左下欄第16行～右下欄第7行 ファミリーなし	7-10, 13, 15 11, 12, 14
A	JP, 50-155347, Y2 (三洋電機株式会社) 23. 12月. 1975 (23. 12. 75) 実用新案登録請求の範囲, 第1図, 第2図 ファミリーなし	3, 6, 11
A	US, 3975247, A (Bernard. J. Stralser) 17. 08月. 1976 (17. 08. 76) ABSTRACT, 第6欄第53行～第7欄第6行, FIG 4, FIG 5 & JP, 50-103172, A	4, 6, 12
E X E A	WO, 99/07641, A1 (EBARA CORPORATION) 10. 08月. 1998 (10. 08. 98) 第12頁第24行～第25行, 第18頁第20行～第24頁第7行, 第27頁第1行～ 第16行, 請求の範囲第1項～第18項, 図1, 図2 ファミリーなし	1, 2, 5, 6 3, 4, 7-15

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents
United States Patent and Trademark
Office
Box PCT
Washington, D.C.20231
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 14 September 2000 (14.09.00)	
International application No. PCT/JP00/00744	Applicant's or agent's file reference YCT-471
International filing date (day/month/year) 10 February 2000 (10.02.00)	Priority date (day/month/year) 10 February 1999 (10.02.99)
Applicant NISHIMURA, Tatsuya et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

10 July 2000 (10.07.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:
2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer Henrik Nyberg
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

SHAMOTO, Ichio
Yuasa And Hara
Section 206, New Ohtemachi Bldg.
2-1, Ohtemachi 2-chome
Chiyoda-ku, Tokyo 100-0004
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 07 April 2000 (07.04.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference YCT-471	
International application No. PCT/JP00/00744	International filing date (day/month/year) 10 February 2000 (10.02.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 10 February 1999 (10.02.99)
Applicant EBARA CORPORATION et al	

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.**
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.**

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
10 Febr 1999 (10.02.99)	11/33455	JP	31 Marc 2000 (31.03.00)
10 Febr 1999 (10.02.99)	11/33026	JP	31 Marc 2000 (31.03.00)

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Carlos Naranjo

Telephone No. (41-22) 338.83.38



THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

SHAMOTO, Ichio
Yuasa And Hara
Section 206, New Ohtemachi Bldg.
2-1, Ohtemachi 2-chome
Chiyoda-ku, Tokyo 100-0004
JAPON

2000. 8. 17

Date of mailing (day/month/year) 17 August 2000 (17.08.00)		
Applicant's or agent's file reference YCT-471		IMPORTANT NOTICE
International application No. PCT/JP00/00744	International filing date (day/month/year) 10 February 2000 (10.02.00)	
Applicant EBARA CORPORATION et al		Priority date (day/month/year) 10 February 1999 (10.02.99)

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

CN,EP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 17 August 2000 (17.08.00) under No. WO 00/47520

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT
NOTIFICATION OF TRANSMITTAL
OF COPIES OF TRANSLATION
OF THE INTERNATIONAL PRELIMINARY
EXAMINATION REPORT

(PCT Rule 72.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

SHAMOTO, Ichio
 Yuasa And Hara
 Section 206, New Ohtemachi Bldg.
 2-1, Ohtemachi 2-chome
 Chiyoda-ku, Tokyo 100-0004
 JAPON

Date of mailing (day/month/year) 02 April 2001 (02.04.01)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference YCT-47.1 E. 6-709	
International application No. PCT/JP00/00744	International filing date (day/month/year) 10 February 2000 (10.02.00)
Applicant EBARA CORPORATION et al	

1. Transmittal of the translation to the applicant.

The International Bureau transmits herewith a copy of the English translation made by the International Bureau of the international preliminary examination report established by the International Preliminary Examining Authority.

2. Transmittal of the copy of the translation to the elected Offices.

The International Bureau notifies the applicant that copies of that translation have been transmitted to the following elected Offices requiring such translation:

EP,CN,US

The following elected Offices, having waived the requirement for such a transmittal at this time, will receive copies of that translation from the International Bureau only upon their request:

None

3. Reminder regarding translation into (one of) the official language(s) of the elected Office(s).

The applicant is reminded that, where a translation of the international application must be furnished to an elected Office, that translation must contain a translation of any annexes to the international preliminary examination report.

It is the applicant's responsibility to prepare and furnish such translation directly to each elected Office concerned (Rule 74.1). See Volume II of the PCT Applicant's Guide for further details.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer Elliott Peretti Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	--

THIS PAGE BLANK (USPTO)

47
Translation

ATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference YCT-471	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/00744	International filing date (day/month/year) 10 February 2000 (10.02.00)	Priority date (day/month/year) 10 February 1999 (10.02.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C02F 1/461, 1/74, 1/02, 1/44, C25B 3/02, 9/00, B01J 3/00, 3/02, A62D 3/00		
Applicant EBARA CORPORATION		

1.	This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2.	This REPORT consists of a total of <u>5</u> sheets, including this cover sheet. <input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT). These annexes consist of a total of _____ sheets.
3.	This report contains indications relating to the following items: I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input checked="" type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 10 July 2000 (10.07.00)	Date of completion of this report 01 November 2000 (01.11.2000)
Name and mailing address of the IPEA/IP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/00744

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the claims:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the drawings:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/00744

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	2-5,7-15	YES
	Claims	1,6	NO
Inventive step (IS)	Claims	3,4,11,12,14	YES
	Claims	1,2,5-10,13,15	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

Document 1: JP, 09-215982, A (Ebara Corporation), 19 August, 1997; claim 1; column 1, lines 26-28; column 4, lines 15-28; Fig. 1

Document 2 JP, 09-117782, A (The Kansai Electric Power Co., Inc.), 6 May, 1997; claim 1; column 1, lines 11-16; column 5, lines 16-28; Fig. 1

Document 3: JP, 50-155347, U (Sanyo Electric Co., Ltd.), 23 December, 1975; utility model claims; Figs. 1, 2

Document 4: US, 3975247, A (Bernard J. Stralser), 17 August, 1976; Abstract; column 6, line 53 to column 7, line 6; Figs. 4, 5

Document 5 JP, 52-114570, A (TDK Corporation), 26 September, 1977; page 1, lower left column, lines 9-20; page 2, upper left column, line 16 to upper right column, line 5; page 2, lower left column, lines 1-6; page 3, lower left column, line 16 to lower right column, line 7

Claims 1, 6

The subject matter of claims 1 and 6 does not appear to be novel in view of document 1 cited in the ISR.

The hydrothermal electrolysis devices disclosed in claims 1 and 6 are disclosed in document 1 [claim 1; column 1, lines 26-28; column 4, lines 15-28; Fig. 1].

Document 1 does not contain any disclosures to the effect that the surface area of the electrodes is at least 0.05m^2 per m^3 of the volume of the chamber. Nevertheless, in view of the fact that for a cylinder for which the radius of the bottom face is less than 40m the area of the inner wall is more than 0.05m^2 per m^3 of volume and the fact that the radius of the bottom face of this kind of water treatment device is usually less than 40m, it is considered that for the water treatment device disclosed in document 1 the area of the inner wall, i.e. the surface area of the anode, must be at least 0.05m^2 per m^3 of volume.

Claims 2, 5

The subject matter of claims 2 and 5 does not appear to involve an inventive step in view of documents 1 and 2 cited in the ISR.

Document 1 does not contain any disclosures to the effect that an introduction port and an oxidizer line are provided at the bottom of the reactor and a discharge port is provided at the top of the reactor. Nevertheless, the inventions disclosed in documents 1 and 2 fall under closely related technical fields in the sense that both concern the treatment of wastewater at high temperature and pressure and in the presence of an oxidizer, and so it is considered that it would have been easy for a person skilled in the art to conceive of applying the technical means disclosed in document 2 whereby an introduction port and a hydrogen peroxide injecting pipe are provided at the bottom of the reactor and a discharge port is provided at the top of the reactor to the water treatment device disclosed in document 1.

Claims 3, 11

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/00744

Supplemental Box

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of Box V (Citations and explanations):

The subject matter of claims 3 and 11 is considered to involve an inventive step when compared with the documents cited in the ISR.

There are no disclosures in document 1 to the effect that the hydrothermal electrolysis device has 2 or more cylindrical reaction chambers, where each reaction chamber has a metallic inner chamber that acts as a cathode and has anodes disposed within it, nor is it considered that it would be easy for a person skilled in the art to conceive of this point based on document 3.

Claims 4, 12

The subject matter of claims 4 and 12 is considered to involve an inventive step when compared with the documents cited in the ISR.

There are no disclosures in document 1 to the effect that the first and second electrodes are disposed concentrically to each other, nor is it considered that it would be easy for a person skilled in the art to conceive of this point based on document 4.

Claims 7-10, 13, 15

The subject matter of claims 7-10, 13 and 15 does not appear to involve an inventive step in view of documents 1 and 5 cited in the ISR.

Document 1 does not contain any disclosures to the effect that the treatment device possesses a device for supplying electrically conductive particles. Nevertheless, the inventions disclosed in documents 1 and 5 fall under closely related technical fields in the sense that both involve applying a voltage to the wastewater, and so it is considered that it would have been easy for a person skilled in the art to conceive of applying the technical means disclosed in document 2 whereby electrically conductive particles are fed into the wastewater when carrying out the electrolysis to the water treatment method disclosed in document 1.

Moreover, it is considered that separating the electrically conductive particles from the wastewater using something like a cyclone or a filter, and then reusing them would be obvious to a specialist in the technical field in question.

Claim 14

The subject matter of claim 14 is considered to involve an inventive step when compared with the documents cited in the ISR.

There are no disclosures in document 1 to the effect that the wastewater contains strong acid ions, and moreover it is considered that by virtue of this point the invention of the present application exhibits the advantageous effect whereby the hydrothermal electrolysis reaction can be made to proceed efficiently.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/00744

VI. Certain documents cited

1. Certain published documents (Rule 70.10)

<u>Application No. Patent No.</u>	<u>Publication date (day/month/year)</u>	<u>Filing date (day/month/year)</u>	<u>Priority date (valid claim) (day/month/year)</u>
WO,99/07641,A1 [E,X]	18 February 1999 (18.02.1999)	10 August 1998 (10.08.1998)	11 August 1997 (11.08.1997)

2. Non-written disclosures (Rule 70.9)

<u>Kind of non-written disclosure</u>	<u>Date of non-written disclosure (day/month/year)</u>	<u>Date of written disclosure referring to non-written disclosure (day/month/year)</u>
---------------------------------------	--	--

THIS PAGE BLANK (USPTO)

4T

特 許 協 力 条 約

R 17 NOV 2000	
WIPO	PCT


PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 YCT-471	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/00744	国際出願日 (日.月.年) 10.02.00	優先日 (日.月.年) 10.02.99
国際特許分類 (IPC) Int. Cl ⁷ C02F1/461, 1/74, 1/02, 1/44, C25B3/02, 9/00, B01J3/00, 3/02, A62D3/00		
出願人 (氏名又は名称) 株式会社荏原製作所		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。	
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>5</u> ページからなる。 <input type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で _____ ページである。	
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。 I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input checked="" type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見	

国際予備審査の請求書を受理した日 10.07.00	国際予備審査報告を作成した日 01.11.00	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 中野 孝一	4D 2928 
電話番号 03-3581-1101 内線 3419		

THIS PAGE BLANK (USPTO)

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。
PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

- | | | |
|-------------------------------------|----------------|----------------------|
| <input type="checkbox"/> 明細書 | 第 _____ ページ、 | 出願時に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 明細書 | 第 _____ ページ、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 明細書 | 第 _____ ページ、 | 付の書簡と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 請求の範囲 | 第 _____ 項、 | 出願時に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 請求の範囲 | 第 _____ 項、 | PCT19条の規定に基づき補正されたもの |
| <input type="checkbox"/> 請求の範囲 | 第 _____ 項、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 請求の範囲 | 第 _____ 項、 | 付の書簡と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 図面 | 第 _____ ページ/図、 | 出願時に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 図面 | 第 _____ ページ/図、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 図面 | 第 _____ ページ/図、 | 付の書簡と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 明細書の配列表の部分 | 第 _____ ページ、 | 出願時に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 明細書の配列表の部分 | 第 _____ ページ、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 明細書の配列表の部分 | 第 _____ ページ、 | 付の書簡と共に提出されたもの |

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)

請求の範囲	2-5, 7-15	有
請求の範囲	1, 6	無

進歩性(IS)

請求の範囲	3, 4, 11, 12, 14	有
請求の範囲	1, 2, 5-10, 13, 15	無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲	1-15	有
請求の範囲		無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

文献1: JP, 09-215982, A (株式会社荏原製作所), 19. 08月. 1997, 【請求項1】, 第1欄第26行~第28行, 第4欄第15行~第28行, 【図1】

文献2: JP, 09-117782, A (関西電力株式会社), 06. 05月. 1997, 【請求項1】, 第1欄第11行~第16行, 第5欄第16行~第28行, 図1

文献3: JP, 50-155347, U (三洋電機株式会社), 23. 12月. 1975, 実用新案登録請求の範囲, 第1図, 第2図

文献4: US, 3975247, A (Bernard. J. Stralser), 17. 08月. 1976, ABSTRACT, 第6欄第53行~第7欄第6行, FIG 4, FIG 5

文献5: JP, 52-114570, A (東京電気化学工業株式会社), 26. 09月. 1977, 第1頁左下欄第9行~第20行, 第2頁左上欄第16行~右上欄第5行, 第2頁左下欄第1行~第6行, 第3頁左下欄第16行~右下欄第7行

請求の範囲1, 6

請求の範囲1, 6に記載された発明は、国際調査報告に記載された文献1より新規性を有しない。

請求の範囲1, 6に記載された水熱電気分解装置は、文献1の【請求項1】, 第1欄第26行~第28行, 第4欄第15行~第28行, 【図1】に開示されている。

文献1には、電極の表面積がチャンバーの体積 1m^3 あたり 0.05m^2 以上であることは記載されていないが、底面の半径が40m以下の円筒は、内周壁の面積がその体積 1m^3 あたり 0.05m^2 以上であること及び、通常このような水処理装置の底面の半径は40m以下であることを考慮すると、文献1記載の水処理装置の内周壁の面積、すなわち陽極の表面積は、その体積 1m^3 あたり 0.05m^2 以上であると認められる。

請求の範囲2, 5

請求の範囲2, 5に記載された発明は、国際調査報告書に引用された文献1および文献2より進歩性を有しない。

文献1には反応器の下方に導入口、酸化剤ラインを設け、上方に排出口を設けることは開示されていないが、文献1記載の発明と文献2記載の発明とは、高温高压、酸化剤の存在下で排水を処理するという点で互いに密接に関連した技術分野に属するものであるので、反応装置下方に導入口、過酸化水素注入管を設け、上方に排出口を設けるという文献2記載の技術手段を文献1記載の水処理装置に適用することは、当業者であれば容易に想到し得たものである。

請求の範囲3, 11

請求の範囲3, 11に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献に対して進歩

THIS PAGE BLANK (USPTO)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

VI. ある種の引用文献

1. ある種の公表された文 (PCT規則70.10)

出願番号 特許番号	公知日 (日. 月. 年)	出願日 (日. 月. 年)	優先日 (有効な優先権の主張) (日. 月. 年)
WO, 99/07641, A1 [E, X]	18. 02. 99	10. 08. 98	11. 08. 97

2. 書面による開示以外の開示 (PCT規則70.9)

書面による開示以外の開示の種類	書面による開示以外の開示の日付 (日. 月. 年)	書面による開示以外の開示に言及している 書面の日付 (日. 月. 年)
-----------------	------------------------------	--

THIS PAGE BLANK (USPTO)

補充欄 (いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること)

第 V 欄の続き

性を有する。

文献1には水熱電気分解装置が2以上の円筒形の反応室を有し、当該反応室の各々は陰極として作用する金属製の内室を有し、内部に陽極が配置されていることは開示されておらず、しかもその点は文献3から当業者といえども容易に想到し得ないものである。

請求の範囲4, 12

請求の範囲4, 12に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献に対して進歩性を有する。

文献1には第1電極と第2電極が交互に同心円状に配置されていることは開示されておらず、しかもその点は文献4から当業者といえども容易に想到し得ないものである。

請求の範囲7-10, 13, 15

請求の範囲7-10, 13, 15に記載された発明は、国際調査報告書に引用された文献1および文献5より進歩性を有しない。

文献1には処理装置が導電性粒子の供給装置を有することは開示されていないが、文献1記載の発明と文献5記載の発明とは、排水に電圧を印加するという点で互いに密接に関連した技術分野に属するものであるので、電気分解する際に排水に導電性粒子を投入するという文献2記載の技術手段を文献1記載の水処理方法に適用することは、当業者であれば容易に想到し得たことである。

また、導電性粒子をサイクロン、フィルタ等を用い排水から導電性粒子を分離して再利用することは当該技術分野の専門家にとって自明のものである。

請求の範囲14

請求の範囲14に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献に対して進歩性を有する。

文献1には排水が強酸イオンを含むことが開示されておらず、一方、本願発明はそれにより水熱電気分解反応を効率よく進行させるという有利な効果を発揮する。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

E P

US

P C T

国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第40、41条)
[PCT 18 条、PCT 規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 YCT-471	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/00744	国際出願日 (日.月.年) 10.02.00	優先日 (日.月.年) 10.02.99
出願人 (氏名又は名称) 株式会社荏原製作所		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条 (PCT 18 条) の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない (第 I 欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している (第 II 欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第 III 欄に示されているように、法施行規則第47条 (PCT 規則38.2(b)) の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から 1 カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 1 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ C02F1/461, 1/74, 1/02, 1/44, C25B3/02, 9/00, B01J3/00, 3/02, A62D3/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ C02F1/461, 1/74, 1/02, 1/44, C25B3/02, 9/00, B01J3/00, 3/02, A62D3/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI (DIALOG)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y Y A	JP, 09-215982, A (株式会社荏原製作所) 19. 08月. 1997 (19. 08. 97) 【請求項1】, 第1欄第26行~第28行, 第4欄第15行~第28行, 【図1】 ファミリーなし	1, 6 2, 5, 7-10, 13, 15 3, 4, 11, 12, 14
Y A	JP, 09-117782, A (関西電力株式会社) 06. 05月. 1997 (06. 05. 97) 【請求項1】, 第1欄11行~第16行, 第5欄第16行~第28行, 図1 ファミリーなし	2, 5 3, 4, 6, 11, 12

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

14. 04. 00

国際調査報告の発送日

25.04.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山田 泰之



4D

2928

電話番号 03-3581-1101 内線 3419

THIS PAGE BLANK (USPTO)

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	JP, 52-114570, A (東京電気化学工業株式会社) 26. 09月. 1977 (26. 09. 77) 第1頁左下欄第9行～第20行, 第2頁左上欄第16行～右上欄第5行, 第2 頁左下欄第1行～第6行, 第3頁左下欄第16行～右下欄第7行 ファミリーなし	7-10, 13, 15 11, 12, 14
A	JP, 50-155347, Y2 (三洋電機株式会社) 23. 12月. 1975 (23. 12. 75) 実用新案登録請求の範囲, 第1図, 第2図 ファミリーなし	3, 6, 11
A	US, 3975247, A (Bernard. J. Stralser) 17. 08月. 1976 (17. 08. 76) ABSTRACT, 第6欄第53行～第7欄第6行, FIG 4, FIG 5 & JP, 50-103172, A	4, 6, 12
E X E A	WO, 99/07641, A1 (EBARA CORPORATION) 10. 08月. 1998 (10. 08. 98) 第12頁第24行～第25行, 第18頁第20行～第24頁第7行, 第27頁第1行～ 第16行, 請求の範囲第1項～第18項, 図1, 図2 ファミリーなし	1, 2, 5, 6 3, 4, 7-15

THIS PAGE BLANK (USPTO)

THIS PAGE BLANK (USPTO)